

ORSAY
Série A
N° d'ordre
644

T H E S E S

PRESENTEES

A LA FACULTE DES SCIENCES D'ORSAY
UNIVERSITE DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Jean-Claude **NICOUD**

PREMIERE THESE

CONTRIBUTION A L'ETUDE DES DEFAUTS
CREES DANS LE BERYLLIUM ET LE MAGNESIUM
PAR IRRADIATION ET ECROUISSAGE A BASSE TEMPERATURE

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 11 mai 1970 devant la Commission d'Examen

MM. **GUINIER**

Président

LACOMBE

CIZERON

DELAPLACE

Examineurs

ORSAY
Série A
N° d'ordre
644

T H E S E S

PRESENTEES

**A LA FACULTE DES SCIENCES D'ORSAY
UNIVERSITE DE PARIS**

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Jean-Claude NICOUD

PREMIERE THESE

**CONTRIBUTION A L'ETUDE DES DEFAUTS
CREES DANS LE BERYLLIUM ET LE MAGNESIUM
PAR IRRADIATION ET ECROUISSAGE A BASSE TEMPERATURE**

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 11 mai 1970 devant la Commission d'Examen

MM. GUINIER

Président

LACOMBE

CIZERON

DEPLAACE

Examineurs



Ce travail a été effectué au Centre d'Etudes Scientifiques de l'Université de Montréal, sous la direction de la Professeure Huguette Gauthier.

Je tiens tout d'abord à remercier la Professeure Huguette Gauthier pour sa confiance et son accueil au Centre d'Etudes Scientifiques. Je tiens également à remercier les Professeurs Robert Gauthier et Jean Gauthier pour leur accueil et leur soutien.

Je tiens également à remercier mes amis et ma famille pour leur soutien et leur confiance. En particulier, je tiens à remercier mes parents pour leur amour et leur confiance.

Je tiens également à remercier les Professeurs Robert Gauthier et Jean Gauthier pour leur accueil et leur soutien.

Je tiens également à remercier mes amis et ma famille pour leur soutien et leur confiance. En particulier, je tiens à remercier mes parents pour leur amour et leur confiance.

Je tiens également à remercier les Professeurs Robert Gauthier et Jean Gauthier pour leur accueil et leur soutien.

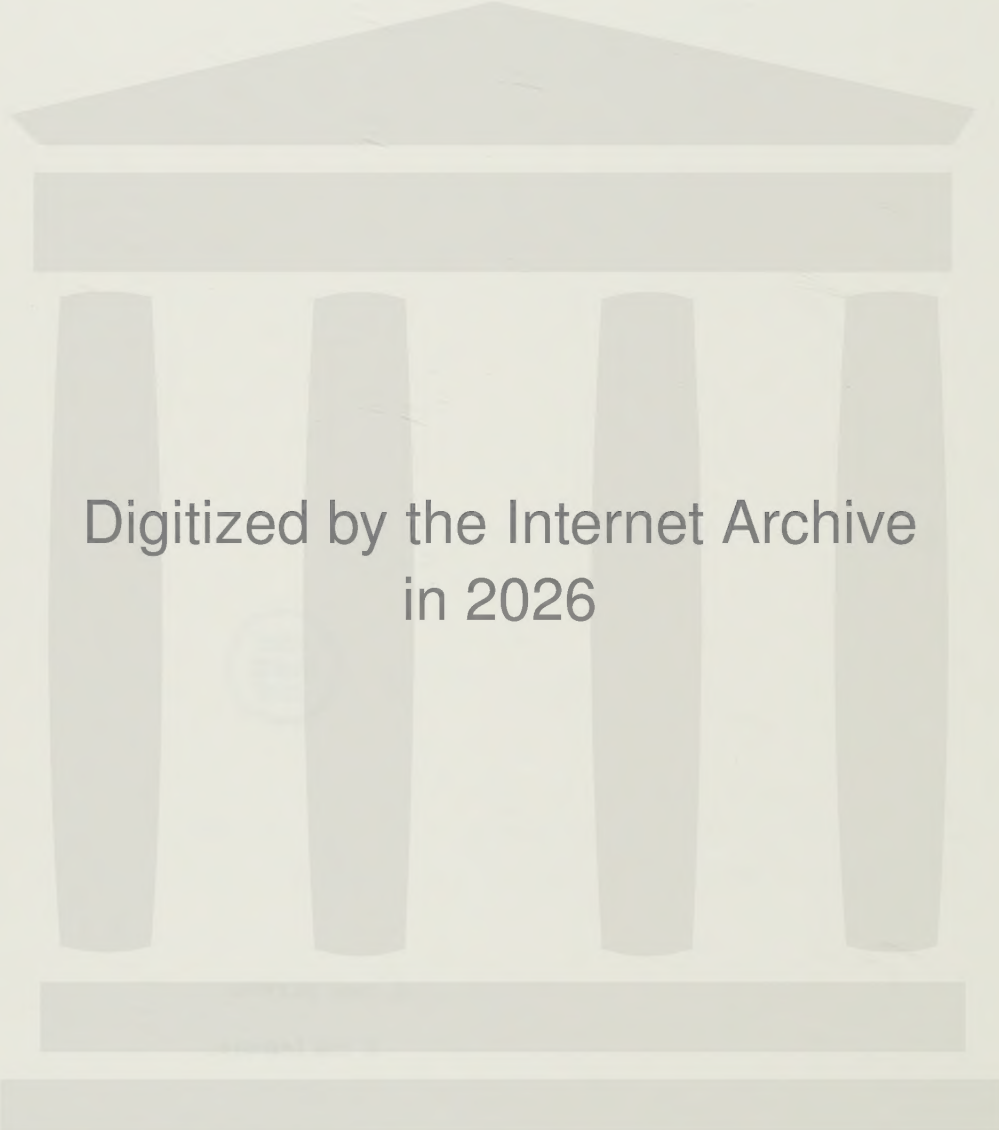
Je tiens également à remercier mes amis et ma famille pour leur soutien et leur confiance. En particulier, je tiens à remercier mes parents pour leur amour et leur confiance.

Je tiens également à remercier les Professeurs Robert Gauthier et Jean Gauthier pour leur accueil et leur soutien.

Je tiens également à remercier mes amis et ma famille pour leur soutien et leur confiance. En particulier, je tiens à remercier mes parents pour leur amour et leur confiance.

Je tiens également à remercier les Professeurs Robert Gauthier et Jean Gauthier pour leur accueil et leur soutien.

Je tiens également à remercier mes amis et ma famille pour leur soutien et leur confiance. En particulier, je tiens à remercier mes parents pour leur amour et leur confiance.



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41551512_0045

Ce travail a été effectué au Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble, dans le laboratoire de la Section de Recherche de Métallurgie Physique.

Monsieur Y. ADDA, Chef de cette Section a eu l'idée de ce travail et a bien voulu m'accueillir dans son laboratoire. Il a de plus suivi avec intérêt son avancement et a contribué à son orientation au cours de fructueuses discussions. Je l'en remercie très sincèrement.

J'exprime ma profonde reconnaissance à Monsieur le Professeur P. LACOMBE qui m'a fait bénéficier de son enseignement de 3ème cycle et qui a suivi avec intérêt le développement de ce travail.

Je remercie Monsieur le Professeur A. GUINIER qui me fait l'honneur d'examiner ce travail et de présider le jury de thèse.

Mes remerciements vont également à Monsieur CIZERON, Maître de conférences qui a bien voulu faire partie de ce jury.

J'exprime ma profonde gratitude à Monsieur DELAPLACE qui a suivi avec la plus grande attention la réalisation de ce travail et qui a bien voulu faire partie du jury de thèse. Qu'il trouve ici l'expression de ma très vive reconnaissance.

Mes remerciements vont également à Monsieur HILLAIRET qui, au cours de fructueuses et amicales discussions, a contribué efficacement à la réalisation de cette étude. Je lui en suis très reconnaissant.

Mon initiation à la recherche a été facilitée par l'expérience et les conseils des techniciens et des chercheurs du laboratoire. Qu'ils en soient remerciés ainsi que Monsieur SCHUMACHER avec qui j'ai pu avoir d'intéressantes discussions pendant son séjour dans le laboratoire.

J'exprime ma profonde gratitude à toutes les personnes qui ont apporté une contribution à la partie expérimentale de ce travail. Que MM. BONJOUR et LAGNIER (Section PCBT-CEN. Grenoble) pour la partie énergie emmagasinée, Melle LEVY et Mme ANTOLIN (Section RMP-CEN. Saclay) pour la partie microscopie électronique, trouvent ici l'expression de ma reconnaissance.

Je remercie enfin le personnel des Sections PCBT, des Accélérateurs, du Service des Piles (CEN. Grenoble), ainsi que les Docteurs WENZL et VOGL (Technische Hochschule - Munich) qui ont mis à ma disposition d'importants moyens d'irradiation.

TABLE DES MATIERES.

	Pages
INTRODUCTION	7
CHAPITRE I - ASPECTS THEORIQUES DE LA CREATION DES DEFAUTS PONCTUELS DANS LE Be ET LE Mg.	11
Section I-A - Irradiation	11
I-A-1 - Effet Wigner	11
I-A-2 - Réactions nucléaires	15
Section I-B - Ecrouissage	19
CHAPITRE II - TECHNIQUES ET METHODES EXPERIMENTALES	21
Section II-A - Nature des échantillons	21
II-A-1 - Béryllium	21
II-A-2 - Magnésium	22
Section II-B - Dispositifs expérimentaux d'irradiation et d'écrouissage	23
II-B-1 - Irradiations	23
- Neutrons	23
- Electrons	24
II-B-2 - Ecrouissage	25
- Traction	25
- Compression	25
Section II-C - Méthodes expérimentales pour l'étude de la création et de la restauration des défauts	26
II-C-1 - Résistivité électrique	26
1 - Résistivité électrique et défauts	26
2 - Variation de la résistivité en fonction du flux de particules et de la déformation	27
3 - Etude de la restauration	29
4 - Dispositifs expérimentaux	33

II-C-2 - Energie emmagasinée	37
1 - Energie emmagasinée au cours d'une irradiation ou d'un écrouissage	37
2 - Libération de l'énergie au cours du recuit	38
3 - Dispositifs expérimentaux	40
II-C-3 - Frottement intérieur et mesures de module élastique	41
1 - Frottement intérieur	41
2 - Variation du module élastique	43
3 - Dispositifs expérimentaux	43
II-C-4 - Microscopie électronique	44
 CHAPITRE III - BERYLLIUM	 45
RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSIONS	
 Section III-A - Béryllium - Défauts ponctuels créés par irradiation	 45
III-A-1 - Résultats expérimentaux	45
1 - Irradiation par les neutrons	45
2 - Irradiation par les électrons	50
III-A-2 - Discussion des résultats	52
1 - Etude de la création des défauts ponctuels	52
2 - Etude de la restauration	58
Section III-B - Béryllium - Défauts ponctuels créés par écrouissage	61
III-B-1 - Etude de la création des défauts par écrouissage	61
III-B-2 - Etude de la restauration des défauts créés par écrouissage	63
1 - Etude par résistivité électrique	63
2 - Etude par frottement intérieur et microscopie électronique	64
 CHAPITRE IV - MAGNESIUM	 69
RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSIONS	
 Section IV-A - Magnésium - Défauts ponctuels créés par irradiation	 69
IV-A-1 - Résultats expérimentaux	69
1 - Irradiation par les neutrons	69
2 - Irradiation par les électrons	76
IV-A-2 - Discussion des résultats	77
1 - Etude de la création des défauts ponctuels	77
2 - Etude de la restauration des défauts ponctuels	82
Section IV-B - Magnésium - Défauts ponctuels créés par écrouissage	91
IV-B-1 - Etude de la création des défauts ponctuels par écrouissage	91
IV-B-2 - Etude de la restauration des défauts ponctuels créés par écrouissage	91

CHAPITRE V - BERYLLIUM et MAGNESIUM	93
COMPARAISON DES EFFETS D'IRRADIATION ET DES EFFETS D'ECROUISSAGE DANS LES DEUX METAUX	
Section V-A - Effets d'irradiation	93
V-A-1 - Création des défauts	93
V-A-2 - Restauration des défauts	94
Section V-B - Effets d'écrouissage.	95
 CONCLUSION	 97
 Annexe I Modèle des sphères dures	 99
Annexe II Défauts ponctuels créés par les neutrons d'énergie comprise entre 0,5 eV et 10^4 eV	103
Annexe III Modèle des chocs coulombiens	107
Annexe IV Modèle pour le calcul des énergies critiques de focalisation	109
Annexe V Modèles classiques pour l'interprétation de la restauration des défauts ponctuels	111
 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	 113

CONTRIBUTION A L'ETUDE DES DEFAUTS CREES DANS LE BERYLLIUM ET LE MAGNESIUM PAR IRRADIATION ET ECROUISSAGE A BASSE TEMPERATURE

INTRODUCTION.

Depuis quelques années, un nombre important de travaux expérimentaux ou théoriques ont été effectués dans le domaine des défauts ponctuels dans les métaux. Ces études en majorité ont été entreprises pour les métaux de structure cubique à faces centrées.

Le but de ce travail était d'apporter une contribution à la connaissance des défauts ponctuels dans les métaux de structure hexagonale compacte en étudiant le béryllium et le magnésium, deux métaux qui présentent un intérêt métallurgique et nucléaire certain.

Ce travail s'insère dans le cadre d'une étude plus générale des défauts ponctuels dans le béryllium et le magnésium entreprise dans le laboratoire du DM-SRMP (CEN-Grenoble). Le sujet de la présente étude se limite aux défauts ponctuels créés par irradiation et par écrouissage. Les études des défauts lacunaires à l'équilibre thermodynamique dans le cas du magnésium [1] ou après trempe dans le béryllium [2] et le magnésium [3] [4] ont été entreprises ou sont en cours dans ce même laboratoire.

Dans ce chapitre d'introduction, nous rappellerons au paragraphe 1 quelques notions très générales relatives aux défauts ponctuels dans les métaux et aux techniques d'étude, puis nous passerons brièvement en revue, au paragraphe 2, les connaissances actuellement acquises dans ce domaine pour les deux métaux étudiés.

1 - LES DEFAUTS PONCTUELS DANS LES METAUX.

Les défauts ponctuels sont des anomalies dans l'arrangement régulier des atomes du réseau dont le volume est de l'ordre de grandeur du volume atomique élémentaire. Les défauts ponctuels élémentaires sont l'atome interstitiel et la lacune. Des défauts de même nature peuvent interagir entre eux et former ainsi des bi - tri ... ou multi-défauts que, par extension, on classe dans la catégorie des défauts ponctuels. Les défauts ponctuels peuvent en outre interagir avec les impuretés et former des complexes défauts-impuretés.

L'introduction de défauts ponctuels dans le réseau d'un métal se traduit par une augmentation de son énergie interne ΔU , de son entropie ΔS , et par un changement de volume ΔV . Les relations thermodynamiques classiques

$$\Delta H = \Delta U + P \Delta V$$

$$\Delta G = \Delta H - T \Delta S$$

donnent les variations correspondantes d'enthalpie ΔH et d'enthalpie libre ΔG . La concentration de défauts d'un même type en équilibre thermodynamique à la température T est obtenue pour :

$$\frac{\partial \Delta G}{\partial n} = 0$$

n : nombre de défauts.

A la pression atmosphérique, le terme Pv (v étant le volume de formation de la lacune ou de l'interstitiel) est très petit devant la variation de l'énergie interne qui est égale à l'énergie de formation de la lacune E_{fl} ou de l'interstitiel E_{fi} . La variation d'enthalpie se réduit donc à la variation d'énergie interne. On peut calculer les concentrations de lacunes et d'interstitiels en équilibre à la température T . On obtient :

$$c_l \approx \exp \left(\frac{S_{fl}}{k} \right) \exp \left(- \frac{E_{fl}}{kT} \right)$$

$$c_i \approx \exp \left(\frac{S_{fi}}{k} \right) \exp \left(- \frac{E_{fi}}{kT} \right)$$

où

- S_{fl} : entropie de formation d'une lacune ($\sim k$)
- S_{fi} : entropie de formation d'un interstitiel ($\sim k$)
- E_{fl} : énergie de formation d'une lacune (~ 1 eV)
- E_{fi} : énergie de formation d'un interstitiel (~ 5 eV)
- k : constant de Boltzmann
- T : température en degrés Kelvin ($^{\circ}K$).

En utilisant les ordres de grandeurs donnés ci-dessus, on calcule pour le magnésium des concentrations de lacunes et d'interstitiels au voisinage du point de fusion qui sont respectivement :

$$c_l \sim 0,9 \cdot 10^{-5}$$

$$c_i \sim 1,1 \cdot 10^{-27}$$

Par conséquent, seuls les défauts de type lacunaire sont accessibles au cours d'expériences effectuées à haute température.

La présence de ces défauts modifie les propriétés physiques du métal (résistivité électrique, chaleur spécifique, ...). Des mesures conjuguées de longueur et de paramètre cristallin renseignent directement sur la concentration de lacunes. L'étude à l'équilibre thermodynamique des défauts lacunaires par ces méthodes expérimentales permet de déterminer les concentrations de lacunes, l'énergie de formation et l'entropie de formation correspondantes.

La majorité des études sur les défauts ponctuels sont effectuées à partir de concentrations de défauts retenus dans le réseau à l'état métastable. Les traitements thermiques suivis de trempe, l'irradiation ainsi que l'écrouissage à basse température, permettent de créer et de retenir ces défauts à l'état métastable. Par ces trois techniques, on produit dans le cristal des défauts dont la complexité va en croissant. Par trempe rapide on retient seulement des défauts de type lacunaire. Par irradiation on crée des lacunes et des interstitiels en nombre théoriquement égal. Par écrouissage on crée peu de défauts simples des deux types, mais surtout des lignes ou amas de défauts ainsi que des dislocations. L'essai doit être effectué à température suffisamment basse pour que les défauts ne puissent pas s'éliminer par migration thermique. L'étude des défauts retenus par trempe à l'état métastable permet de mesurer l'énergie de formation des lacunes, en effectuant des trempes depuis diverses températures. Les défauts ayant été créés par l'une de ces trois techniques, on peut, au cours d'un réchauffage ultérieur, suivre leur élimination thermique et déterminer ainsi les énergies de migration des différents types de défauts.

Dans le cas de lacunes, l'étude par trempe est particulièrement fructueuse. L'irradiation se prête bien à l'étude des interstitiels. En fait, ce domaine est actuellement l'un des plus vivement controversés. L'étude de la restauration des défauts ponctuels créés par écrouissage est plus complexe. Elle renseigne moins sur les propriétés intrinsèques des défauts que sur les interactions entre défauts ponctuels et dislocations.

2 - ASPECTS CRISTALLOGRAPHIQUES ET ETAT DES CONNAISSANCES SUR LES DEFAUTS PONCTUELS DANS LE BERYLLIUM ET LE MAGNESIUM.

2-1 - Rappels cristallographiques.

Le béryllium et le magnésium sont les deux premiers alcalino-terreux de la classification périodique des éléments. Tous deux sont de structure hexagonale compacte ; leurs c/a sont respectivement 1,568 et 1,623. Le magnésium est le plus compact des hexagonaux. Chaque atome de béryllium est entouré de 12 proches voisins dont 6 situés à 2,225 Å et 6 situés à 2,286 Å. Dans le cas du magnésium, ces distances sont respectivement 3,197 Å et 3,209 Å. La maille élémentaire contient 2 atomes et correspond au tiers du prisme hexagonal classique (fig. 1). Les interstitiels dans les métaux hexagonaux compacts peuvent se fixer sur deux types de sites, les sites octaédriques et les sites tétraédriques (fig. 1).

La déformation de ces deux métaux se fait essentiellement par glissement sur les plans de base (0001) dans les directions $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ et sur les plans primatiques $\{10\bar{1}0\}$ dans les directions $\langle 11\bar{2}0 \rangle$. Dans le cas du magnésium, le glissement sur les plans pyramidaux $\{10\bar{1}1\}$ dans les directions $\langle 11\bar{2}0 \rangle$, a été également observé [5].

2-2 - Données bibliographiques dans le cas du béryllium.

MAIRY et HILLAIRET [2] ont effectué des trempes de béryllium à la température de l'azote liquide. La courbe qui exprime l'excès de résistivité en fonction de la température à partir de laquelle la trempe a été effectuée présente un maximum dans le domaine de températures 600-700 °C. Cette anomalie est sans doute liée à la présence d'impuretés ($\sim 0,15\%$) dans le métal. Pour des trempes effectuées depuis des températures plus élevées, la restauration est complexe. Ces expériences n'ont permis de déterminer ni l'énergie de formation ni celle de migration des lacunes.

BLEWITT [6] a irradié du béryllium à 20 °K par des neutrons et a étudié la restauration des défauts ponctuels par des mesures de résistivité électrique.

A notre connaissance, aucun travail sur les défauts ponctuels créés par écrouissage dans le béryllium n'a été publié à ce jour.

2-3 - Données bibliographiques dans le cas du magnésium.

Un certain nombre de travaux effectués par mesure de résistivité électrique [1], [3], [7] ou par microscopie électronique [4], [8] et concernant les défauts de type lacunaire dans le magnésium, ont conduit à des résultats intéressants.

BLEWITT [6] a également irradié à 20 °K du magnésium par des neutrons. O'NEAL et CHAPLIN [9], [10] ont irradié du magnésium à 4 °K avec des électrons de 0,3 et 0,4 MeV et étudié la restauration des défauts ainsi créés entre 4 °K et 140 °K.

Les défauts ponctuels créés par écrouissage ont été étudiés par BEEVERS [7], SHARP [11] et MONTARIOL [12].

CHAPITRE I

ASPECTS THEORIQUES DE LA CREATION DES DEFAUTS PONCTUELS DANS LE BERYLLIUM ET LE MAGNESIUM. CAS DE L'IRRADIATION ET DE L'ECROUISSAGE.

SECTION I-A - IRRADIATION.

Lorsqu'une particule se déplace dans un milieu cristallin, elle perd progressivement de son énergie.

Le ralentissement peut s'effectuer par un ou plusieurs des mécanismes suivants : interactions élastiques conduisant à des déplacements atomiques, interactions inélastiques, réactions nucléaires.

I-A-1 - DEPLACEMENTS ATOMIQUES - EFFET WIGNER.

Aspects généraux.

Par interaction élastique, les particules incidentes peuvent, au cours d'une irradiation, déplacer des atomes à l'intérieur d'un cristal. On caractérise l'interaction des particules avec les atomes du réseau par la section efficace de transfert d'énergie. Au cours des chocs, les transferts d'énergie sont fonction de l'énergie des particules incidentes, du paramètre d'impact du choc (distance minimale de l'atome du réseau à la trajectoire de la particule incidente) et du potentiel d'interaction particule-atome.

On considère qu'il y a déplacement lorsque l'énergie transmise à l'atome du réseau est supérieure à une énergie minimale appelée énergie seuil E_d , correspondant à l'énergie mécanique nécessaire à l'atome choqué pour pouvoir écarter les atomes voisins et se fixer en position interstitielle.

Pour que l'interstitiel créé soit stable, il faut qu'il soit créé à l'extérieur du "volume de recombinaison" entourant la lacune-mère. A l'intérieur de ce volume, un interstitiel est instable et se recombine avec la lacune suivant un processus athermique.

La variation de l'énergie du réseau au cours du déplacement d'un atome et de sa fixation en position interstitielle est représentée par la figure 2.

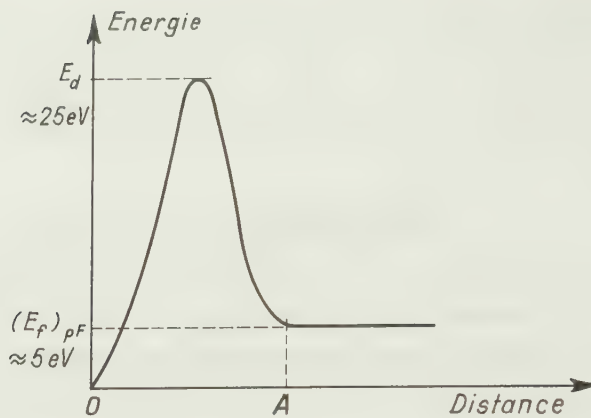
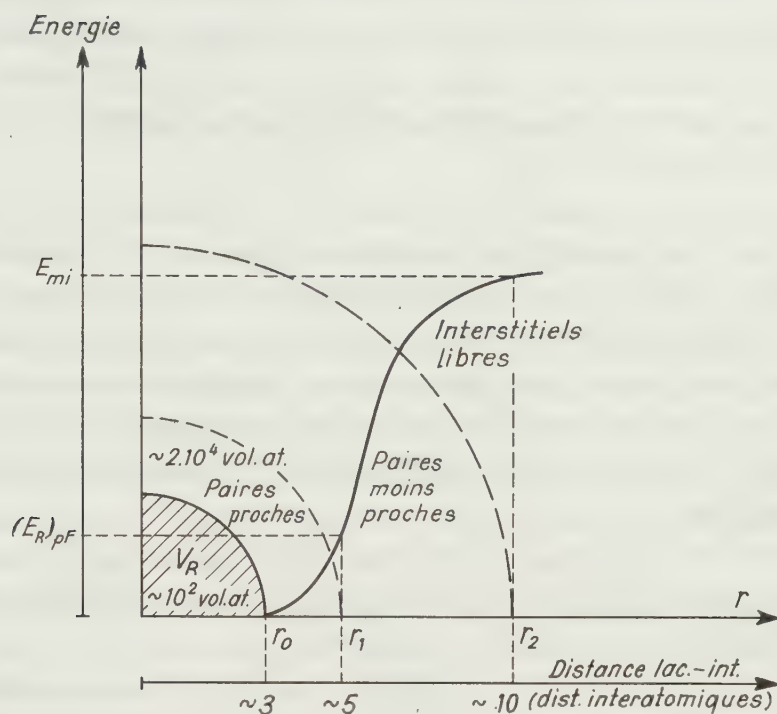


Fig. 2 - Variation de l'énergie du réseau lorsqu'un atome est éjecté de son site (0) à un site (A) hors du volume de recombinaison de la lacune créée en (0).

On conçoit que cette énergie de seuil de déplacement n'est pas la même pour toutes les directions possibles d'éjection de l'atome dans le cristal et que l'anisotropie d'énergie de seuil de déplacement est en relation directe avec la structure cristallographique du métal. A notre connaissance, il n'existe que très peu de données expérimentales ou théoriques sur l'anisotropie de l'énergie de seuil de déplacement dans les métaux de structure hexagonale. Aussi, nous avons adopté pour les calculs de concentration de défauts, dans le béryllium et le magnésium, une valeur moyenne $E_d = 25 \text{ eV}$, qui est de l'ordre de grandeur des énergies déterminées pour les métaux de structure cubique à faces centrées [13].

Une collision avec déplacement simple d'un atome conduit à la formation d'une paire de Frenkel, ensemble constitué par l'atome déplacé se fixant en position interstitielle et la lacune originale ou site laissé vacant par l'atome déplacé. Un déplacement est considéré comme simple lorsque l'atome déplacé n'a pas suffisamment d'énergie pour provoquer lui-même d'autres déplacements. Selon l'énergie transmise, la distance entre interstitiel et lacune sera plus ou moins grande. La figure 3 représente de façon très simplifiée les différentes configurations de paires de Frenkel et les énergies de recombinaison correspondantes en fonction de la distance interstitiel-lacune.



E_{mi} : Energie de migration de l'interstitiel libre.

$(E_R)_{pF}$: Energie de recombinaison de paires de Frenkel proches
(0,1 eV).

Fig. 3 - Configuration de paires de Frenkel et énergies de recombinaison correspondantes en fonction de la distance lacune-interstitiel (d'après VON JAN [14]).

Lorsque r augmente, (fig. 3) on a successivement :

$r < r_0$: l'interstitiel est créé à l'intérieur du volume de recombinaison. La paire est instable et se recombine instantanément.

$r_0 < r < r_1$: les paires créées sont des paires proches.

$r_1 < r < r_2$: les paires créées sont des paires "moins proches" où lacune et interstitiel restent en interaction.

$r > r_2$: les lacunes et interstitiels ne sont plus corrélés. C'est le domaine des interstitiels et lacunes libres.

La figure 3 donne des ordres de grandeur des valeurs de r_0 , r_1 , r_2 dans le cas des métaux nobles.

En fait, sauf dans le cas des particules légères et de très faibles énergies, les énergies transmises aux atomes déplacés sont telles qu'ils peuvent à leur tour provoquer des déplacements atomiques secondaires. Les atomes déplacés par les particules incidentes sont appelés

atomes primaires. Les atomes déplacés par les primaires sont appelés secondaires. L'ensemble des atomes déplacés par un atome primaire est appelé "cascade de déplacements".

Calcul des concentrations de défauts introduites par irradiation.

Application aux Be et au Mg.

Nous avons utilisé des modèles théoriques couramment utilisés pour calculer les concentrations de défauts créés au cours de nos expériences d'irradiation par des neutrons et par des électrons. Ces modèles sont le modèle des sphères dures dans le cas des neutrons (cf. Annexe 1), le modèle des chocs coulombiens dans le cas des électrons (cf. Annexe 3). Ces modèles supposent que les défauts créés sont des paires de Frenkel indépendantes. D'autre part, ils font abstraction de ce qu'il advient de ces atomes après le choc. En particulier, ils n'envisagent pas les recombinaisons possibles.

D'une façon générale, les prévisions du modèle théorique sont en bon accord avec l'expérience dans le cas des irradiations par les électrons, car les particules sont monocinétiques et les défauts créés essentiellement des paires de Frenkel.

Dans le cas des neutrons, les concentrations de défauts calculées théoriquement sont généralement surestimées de façon importante (facteur 3 à 10). Les énergies des atomes primaires sont en effet importantes et des mécanismes complexes peuvent intervenir qui réduisent généralement le nombre de défauts ponctuels effectivement produits dans le cristal. Parmi ces mécanismes, on peut citer :

- la focalisation des chocs atomiques,
- la pointe de déplacement,
- la pointe thermique,
- la canalisation des atomes primaires de forte énergie....

Les collisions focalisées sont d'autant moins efficaces que la masse des atomes est plus faible. L'énergie critique de focalisation $E_f^{(h,k,l)}$ au-dessus de laquelle les collisions ne peuvent pas se focaliser dans la direction (h,k,l) peut être calculée en première approximation en utilisant un potentiel de Born-Mayer pour rendre compte des interactions entre les atomes au cours du choc. Les valeurs de E_f ont été calculées pour les directions denses $\langle 1\bar{1}20 \rangle$, les plus favorables à la propagation (cf. Annexe 4). Les faibles valeurs de l'énergie critique de focalisation calculées pour le magnésium et le béryllium montrent que les collisions focalisées ne peuvent sans doute pas se produire ou sont inefficaces pour réduire le nombre de paires de Frenkel créées. Les zones lacunaires stables imaginées par SEEGER sont liées à l'existence des collisions focalisées. On peut donc penser qu'elles n'existent pas pour ces deux métaux.

Dans les métaux légers, le libre parcours moyen des primaires est relativement grand. En conséquence, le mécanisme de la pointe de déplacement de BRINKMAN est sans doute peu efficace pour réduire le nombre de défauts créés. Cependant, BRINKMAN [15] a déterminé l'énergie critique d'apparition de la zone de déplacement dans le cas de nombreux métaux en supposant que celle-ci apparaît lorsque le libre parcours moyen du primaire devient inférieur à la

distance interatomique. La valeur calculée dans le cas du magnésium est de 550 eV. GENTHON [16] a étudié les possibilités d'apparition de la zone de déplacement en fonction de l'énergie du primaire, pour différents matériaux. Cet auteur conclut à l'inefficacité du mécanisme de la pointe de déplacement pour les éléments dont le numéro atomique est inférieur ou sensiblement égal à 10.

Dans les métaux légers, il est admis que le mécanisme de la pointe thermique de SEITZ et KOEHLER est important à cause notamment de l'importance du ralentissement des atomes primaires par ionisation. On peut estimer le pouvoir de ralentissement des atomes primaires par ionisation, en appliquant la relation de BETHE et BLOCH [17].

Dans le cas du béryllium, pour des atomes primaires dont l'énergie initiale est de 360 keV (énergie maximale des primaires créés par des neutrons de 1 MeV), on calcule une perte maximale d'énergie qui est de l'ordre de 200 eV/distance interatomique. Cette valeur est importante. Toutefois, elle décroît très rapidement le long du trajet de l'atome primaire. Le calcul effectué suppose que l'atome primaire est réduit à l'état d'ion Be^{4+} .

Dans le cas du magnésium, on calcule de la même façon une perte d'énergie par distance interatomique qui est de l'ordre de 450 eV. Cependant, dans ce cas nous avons supposé que l'atome primaire était réduit à l'état d'ion Mg^{2+} .

Les valeurs du pouvoir de ralentissement par ionisation que nous avons calculées conduisent à penser que le mécanisme de la pointe thermique peut jouer un rôle important pour les deux métaux étudiés. Il contribue sans doute très efficacement à la saturation aux fortes doses des courbes de production des défauts en fonction du flux de neutrons rapides.

I-A-2 - REACTIONS NUCLEAIRES.

Cas du béryllium.

Dans le cas d'irradiation par des neutrons, le métal irradié peut être le siège de réactions nucléaires.

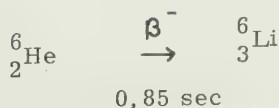
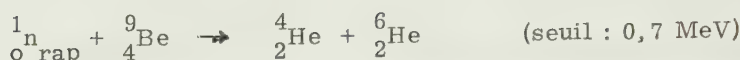
C'est ce qui se produit dans le béryllium irradié par des neutrons rapides (énergie > 1 MeV). Les réactions nucléaires correspondantes sont de deux types (n,2n) et (n, α) [18].

Réaction (n,2n).

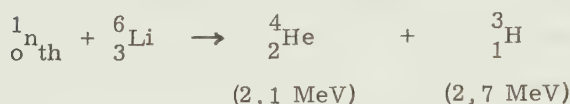


$$10^{-16} \text{ sec.}$$

Réaction (n, α)



Cette réaction (n, α) se poursuit par une réaction nucléaire du ${}^6_3\text{Li}$ avec les neutrons thermiques (énergie $< 0,5 \text{ eV}$)



Ces réactions nucléaires introduisent dans le réseau des atomes d'hélium et de tritium qui, si la température est suffisamment élevée, pourront diffuser et se rassembler en bulles. La formation d'hélium et son rassemblement en bulles sont à l'origine du gonflement et de la fragilisation du béryllium irradié à haute température.

La création d'atomes d'hélium et de tritium dans le réseau va conduire à des variations de propriétés physiques qui vont s'ajouter à celles propres aux défauts ponctuels créés. D'autre part, les atomes d'hélium ou de tritium possèdent une énergie importante (2 MeV environ) et, de ce fait, ils vont créer des défauts ponctuels dans le réseau.

Afin d'évaluer l'importance des effets dus à la formation de l'hélium et du tritium dans le béryllium, nous avons calculé la concentration d'atomes de gaz formé par réactions nucléaires, et la variation correspondante de résistivité, pour une irradiation dans des flux intégrés de $1 \cdot 10^{18} \text{ n}_{\text{rap}}/\text{cm}^2$ et de $5 \cdot 10^{18} \text{ n}_{\text{th}}/\text{cm}^2$. Nous avons également cherché à évaluer la concentration de défauts ponctuels produits par l'hélium et le tritium.

La concentration totale en atomes d'hélium est donnée par [18] :

$$c_{\text{He}} = 2 \phi_{\text{rap}} (\sigma_n + \sigma_\alpha) - \frac{\sigma_\alpha}{\sigma_{\text{Li}}} \frac{\phi_{\text{rap}}}{\phi_{\text{th}}} [1 - \exp(-\sigma_{\text{Li}} \phi_{\text{th}})]$$

avec :

ϕ_{rap}	: flux intégré de neutrons rapides	(= 1×10^{18})
ϕ_{th}	: flux intégré de neutrons thermiques	(= $5,0 \times 10^{18}$)
σ_n	: section efficace pour la réaction I	($\sim 0,1 \text{ barn}$)
σ_α	: section efficace pour la réaction II	($\sim 0,1 \text{ barn}$)
σ_{Li}	: section efficace pour la réaction III	($\sim 1 \text{ 000 barns}$).

On trouve ainsi $c_{\text{He}} \approx 3 \cdot 10^{-7}$. Les concentrations de tritium sont encore plus faibles.

On peut donc prévoir que les effets de ces très faibles concentrations de gaz (en tant

qu'impuretés) sur les propriétés physiques du béryllium, résistivité électrique par exemple, seront négligeables devant les effets dus aux concentrations de défauts ponctuels créés par les neutrons, environ $0,61 \cdot 10^{-3}$ (cf. Annexe 1). HICKMAN et STEVENS [19] ont déterminé l'augmentation de résistivité électrique due à l'hélium formé dans le béryllium irradié, soit $12 \cdot 10^{-6}$ ncm pour 1 % atomique de gaz. Pour une concentration de $3 \cdot 10^{-7}$ atome d'hélium, la variation correspondante de résistivité est de $3,6 \cdot 10^{-10}$ ncm, ce qui est tout à fait négligeable devant les variations de résistivité dues aux défauts ponctuels. Cette variation de résistivité est par ailleurs de l'ordre de grandeur de la sensibilité de nos mesures.

Nous avons cherché à évaluer l'importance de la concentration de défauts ponctuels créés par les atomes d'hélium. Certains auteurs envisagent une très grande efficacité des particules α de l'ordre de 100 à 1 000 fois celle d'un neutron [20]. Pour d'autres [21], la perte d'énergie s'effectue surtout par ionisation des atomes du réseau. Une règle empirique prévoit pour les particules chargées un ralentissement par ionisation jusqu'à une énergie $E_c \approx 1$ à $2A$ keV (A étant la masse atomique de la particule). Si on admet que pour les énergies inférieures à cette limite toute l'énergie est dépensée au cours des collisions, on calcule de façon simple le nombre de paires de Frenkel créées par une particule α , $N_{pF/\alpha}$.

$$N_{pF/\alpha} = \frac{E_c}{2 E_d} \quad (E_d = 25 \text{ eV})$$

$$80 < N_{pF/\alpha} < 160 \quad \text{pour } 4 \text{ keV} < E_c < 8 \text{ keV.}$$

Pour une irradiation dans des flux intégrés de $1 \cdot 10^{18}$ n.rap/cm² et de $5 \cdot 10^{18}$ n.th/cm², on a trouvé une concentration d'atomes d'hélium :

$$c_{He} \approx 3 \cdot 10^{-7}$$

On déduit la concentration de défauts ponctuels créés par les particules α :

$$(c_{pF})_{\alpha} \approx 2,4 \text{ à } 4,8 \cdot 10^{-5}$$

Pour une irradiation dans un même flux de neutrons rapides ($\phi = 1 \cdot 10^{18}$ n.rap/cm²), on calcule théoriquement une concentration en paires créées par les neutrons (voir Annexe 1)

$$(c_{pF})_n \approx 0,61 \cdot 10^{-3}$$

On voit que les défauts créés par les α représentent, en concentration, moins de 10 % des défauts créés par les neutrons. PISSAVY [22], en irradiant par des neutrons à 77 °K de l'aluminium contenant 3,3 at % de lithium naturel (0,27 % at. ${}^6_3\text{Li}$) ou enrichi (3 % at. ${}^6_3\text{Li}$), a montré que les estimations que l'on fait par ce calcul du nombre de paires de Frenkel créées par les atomes d'hélium sont des valeurs par excès. On peut donc considérer les concentrations de défauts créés par les particules α comme négligeables.

La distance de pénétration dans le Be des particules α d'énergie $E_0 = 2,5$ MeV peut être connue en appliquant la règle de BRAAG et KLEEMAN [23]. Celle-ci permet de relier les pénétrations des particules dans deux milieux différents. On a :

$$\frac{L_1}{L_2} = \frac{\rho_2}{\rho_1} \frac{\sqrt{A_1}}{\sqrt{A_2}}$$

expression dans laquelle :

$$\left. \begin{array}{l} L_1 \\ L_2 \end{array} \right\} \begin{array}{l} \text{pénétration dans le milieu 1} \\ \text{pénétration dans le milieu 2} \end{array}$$

$$\left. \begin{array}{l} \rho_1 \\ \rho_2 \end{array} \right\} \text{densités de 1 et 2}$$

$$\left. \begin{array}{l} A_1 \\ A_2 \end{array} \right\} \text{masses atomiques de 1 et 2.}$$

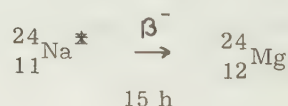
ARON et al. [24] ont calculé, dans le cas de l'aluminium, une pénétration de 2 mg/cm^2 pour des d'énergie $E_0 = 2,5$ MeV. Cela correspond à un trajet de 10μ environ. Par application de la règle de BRAAG et KLEEMAN, on calcule pour le béryllium une distance d'arrêt $L \approx 10 \mu$. Ce parcours est très inférieurs aux dimensions des échantillons, le ralentissement des particules α par ionisation peut contribuer à réduire, par le mécanisme de la pointe thermique, le nombre des défauts créés par les neutrons. Nous considérons toutefois cet effet comme négligeable étant donné la faible concentration d'atomes d'hélium créés par les réactions nucléaires.

Ces conclusions sont directement applicables aux atomes de tritium créés par la fission du ${}^6_3\text{Li}$.

En définitive, on peut penser que notre étude des défauts ponctuels créés par irradiation dans le béryllium ne sera pratiquement pas affectée par les effets des réactions nucléaires.

Cas du magnésium.

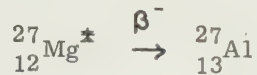
Le magnésium irradié par des neutrons rapides est le siège d'une réaction (n,p) qui conduit à la formation de ${}^{24}_{11}\text{Na}^*$, isotope instable du sodium.



Le $^{24}_{11}\text{Na}^*$ instable redonne le $^{24}_{12}\text{Mg}$ par radioactivité β^- avec une période $T = 15$ h.

La section efficace de capture des neutrons rapides est égale à $\sigma = 0,61.10^{-3}$ barns.

Avec les neutrons thermiques, les différents isotopes du magnésium présentent des réactions de capture. Parmi celles-ci, la réaction avec l'isotope $^{26}_{12}\text{Mg}$ conduit à la formation d'aluminium suivant les réactions :



La section efficace correspondante d'absorption est : $\sigma = 27.10^{-3}$ barns.

Etant donné les valeurs relativement faibles des sections efficaces d'absorption pour ces deux réactions, on peut considérer comme totalement négligeables les concentrations d'impuretés (Na, Al) introduites par l'irradiation. De plus, ces réactions nucléaires sont sans influence sur la création des défauts ponctuels dans le magnésium.

SECTION I-B - ECROUISSAGE.

A basse température, les monocristaux de béryllium et de magnésium n'ont qu'un seul plan de glissement facile, le plan de base (0001). Toutefois, dans le cas de la déformation de polycristaux, il ne peut y avoir de déformation homogène sans que se déclenchent des glissements pyramideux ou prismatiques.

La création de défauts ponctuels par écrouissage est un problème complexe dont les mécanismes élémentaires ont été décrits par SEITZ, FRIEDEL, SAADA. Ils sont généralement classés en deux catégories : création de défauts par annihilation de dipôles, création de défauts par montée des crans. Les défauts ainsi créés ne sont pas en général des défauts ponctuels isolés comme dans le cas de la trempe ou de l'irradiation, mais plutôt des lignes ou des groupes de défauts dont la géométrie est complexe et dépend des modes de création. Dans le cas des polycristaux, la concentration de défauts ponctuels varie avec la déformation suivant une relation de la forme [25] :

$$c_{\text{pF}} \propto \epsilon^n$$

ϵ : allongement plastique

n : coefficient ($0 < n < 2$)

L'étude de la restauration des défauts créés par écrouissage est rendue difficile par les interactions des défauts avec les dislocations qui modifient les spectres de recuit et les énergies d'activation.

En outre, un réarrangement des dislocations créées par l'écrouissage peut se produire au cours du recuit, ce qui a pour conséquence d'augmenter la complexité des stades de restauration.

CHAPITRE II

TECHNIQUES ET METHODES EXPERIMENTALES.

SECTION II-A - NATURE DES ECHANTILLONS.

II-A-1 - BERYLLIUM

Nous avons utilisé pour nos expériences du Be Péchiney SR coulé.

La teneur totale en impuretés de ce matériau est d'environ 1 700 ppm, dont 700 ppm d'impuretés métalliques et 1 000 ppm d'oxyde de béryllium en inclusions. L'analyse détaillée fournie par le fabricant est reportée dans le tableau I.

Fe : 30 ppm	Ca < 30 ppm
Al : 20	Zn < 80
Ni : 30	Si : 15
Cr : 3	C < 400
Mg : 10	Cl < 20
Cu : 4	N : 50
Mn : 12	
	BeO : 1 000

TABEAU I

Pour nos expériences, nous avons utilisé soit des échantillons en forme de plaquettes obtenues par laminage et usinage par électroérosion, soit des fils obtenus par filage à chaud sous gaine de nickel. Dans les deux cas, un traitement de recuit de 1 heure à 1 000 °C a été effectué après la transformation.

La mesure des rapports des résistivités à la température ambiante et à la température de l'hydrogène liquide permet généralement d'avoir une idée approximative de la pureté du métal. Dans le cas de nos échantillons, les rapports que nous avons mesurés sont reportés dans le tableau II.

Qualité	Forme	Dimensions	$\frac{R \text{ 293 } ^\circ K}{77 ^\circ K}$	$\frac{R \text{ 293 } ^\circ K}{20 ^\circ K}$	$\frac{R \text{ 293 } ^\circ K}{4 ^\circ K}$
Be SR coulé laminé	Plaquettes	$\sim 70 \times 3 \times 0,2 \text{ mm}$	32	46	
Be SR coulé filé	Fils	$\phi = 0,5 \text{ mm}$ $L \sim 100 \text{ mm}$	35	55	70

TABLEAU II

Tous les échantillons que nous avons étudiés, étaient polycristallins. Des examens effectués aux rayons X ont montré qu'ils étaient sans texture d'orientation préférentielle.

II-A-2 - MAGNESIUM

Le Mg posant beaucoup moins de problèmes métallurgiques pour son obtention à l'état très pur et pour sa transformation, nous avons disposé pour notre étude d'une assez grande diversité de qualités de magnésium et de formes d'échantillons. Les teneurs globales en impuretés, la nature et la concentration des principales impuretés, les rapports de résistivité $R \text{ 293 } ^\circ K / R \text{ 20 } ^\circ K$ et $R \text{ 293 } ^\circ K / R \text{ 4 } ^\circ K$, enfin les domaines d'utilisation respectifs sont consignés dans le tableau III.

Qualité	Origine	Concentration totale en impuretés (ppm)	Principales impuretés (ppm)	R 293 °K 20 °K	R 293 °K 4 °K	Techniques d'étude	
						après irradiation	après écrouissage
Mg bisublimé 99,95 %	Tréfiné- taux	~ 500	Cu : 22 Fe : 96 Mn : 304 Zn : 33	70	120 (fils) (ϕ :0,5 mm)	Résistivité Frottement intérieur Microscopie électro- nique	Résistivité Frottement intérieur
Mg nucléaire 99,975 %	SRMA-DM Saclay	~ 250	Fe : 25 Mn : 30 Zn : 25 Ca : 25 Al : 25 Si : 50	120	-	Energie emmaga- signée	
Mg ZF 1 99,995 %	Lab. Métal- lurgie Fac. Scien- ces Lille	~ 50	Impuretés non dosées	310	870 (Rubans) (épaisseur: 250 μ)	Résistivité Microscopie électroni- que	
Mg ZF 2 99,997 %	C.N.R.S. (Vitry)	~ 30	Cu : 10 Fe : 7 Mn : 9	-	230 (Rubans) (épaisseur: 30 μ)	Résistivité ($T > T_{amb}$) Frottement intérieur	
Mg ZF 3 99,9999%	C.N.R.S. (Vitry)	~ 1	Zn : 0,4 Mn : 0,44	666	3 300 (fils) (ϕ : 1 mm)	Microscopie électroni- que	

TABLEAU III.

Les échantillons étaient polycristallins, sans texture d'orientation préférentielle. Les expériences ont été effectuées sur des échantillons ayant subi un traitement de recuit sous vide pendant quelques heures à 350 °C.

SECTION II-B - DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX D'IRRADIATION ET D'ECROUISSAGE.

II-B-1 - IRRADIATIONS.

Irradiations par les neutrons.

Les irradiations ont été effectuées à 4 °K, 27 °K ou 77 °K. Le tableau IV schématise les différentes irradiations neutroniques que nous avons effectuées et leurs utilisations dans le cadre de cette étude.

T _{irrad} (°K)	Pile	Gamme de flux intégrés	Technique d'étude	Restauration
4° K (hélium liquide)	Munich- Garching	5,0.10 ¹⁶) E > et) 0,1 MeV 1,2.10 ¹⁸)	Résistivité électrique	Etude en pile
27 °K (néon liquide)	Grenoble Pile Mélusine	2 à 3.10 ¹⁷ n. rap/cm ²	Energie emmagasinée	))) Etude
77 °K (azote liquide)	Grenoble Pile Mélusine	10 ¹⁷ < ϕ < 10 ¹⁹ n. rap/cm ²	Résistivité électrique Energie em- magasinée Frottement intérieur Microscopie électronique	)) hors) pile))))

TABLEAU IV.

Dans le cas des irradiations effectuées à GRENOBLE, la détermination des flux (neutrons rapides d'énergie > 1 MeV) se fait au moyen de dosimètres en nickel ou en titane fixés sur les échantillons. La précision des mesures de dosimétrie est d'environ 5 %.

Dans la boucle d'irradiation à 4 °K du réacteur de la Technische Hochschule de Munich, la dosimétrie des neutrons d'énergie E > 0,1 MeV est effectuée par analyse quantitative d'un gaz provenant d'une réaction nucléaire.

Irradiation par les électrons à 20 °K.

Pendant l'irradiation l'échantillon est placé au fond d'un cryostat à hydrogène liquide. Celui-ci est raccordé à l'accélérateur par un canal cylindrique comportant un dispositif électromagnétique de centrage et de balayage du faisceau d'électrons.

L'accélérateur est un appareil Van de Graaf horizontal de 3 MeV. Nous avons effectué des irradiations avec des électrons de différentes énergies : 2, 2,5 et 3 MeV. Au cours de l'irradiation, l'échantillon est immergé dans l'hydrogène liquide. Le flux de particules traversant l'échantillon est déterminé par la mesure du courant d'électrons recueillis par la paroi interne du cryostat supportant le porte-échantillon, laquelle est isolée électriquement de la masse. Le courant est de l'ordre de 20 µA.

Avant chaque irradiation, on vérifie l'homogénéité du faisceau et son centrage par rapport à l'axe de la fenêtre du cryostat au moyen d'un papier sensible fixé à la place de l'échantillon.

Les flux intégrés d'électrons correspondant à nos irradiations étaient compris entre 5.10¹⁷ et 1.2.10¹⁸ e⁻/cm².

L'étude de la création et de la restauration des défauts ponctuels créés par irradiation électronique a été effectuée essentiellement par résistivité électrique.

La déformation des échantillons de béryllium et de magnésium a été effectuée à la température de l'azote liquide (77 °K) soit par traction, soit par compression.

Dispositif de traction.

Pour effectuer la traction de fils métalliques dans l'azote liquide et mesurer les variations de résistance électrique des échantillons au cours de la traction, nous avons utilisé le système représenté par la figure 4.

Un tube cylindrique est fixé sous la traverse mobile d'une machine Instron, type TTCML. Le fond de ce tube porte le mors inférieur. Le mors supérieur est fixé à l'extrémité d'une tige reliée à la cellule de charge au travers du trou existant dans la traverse mobile. Le dispositif est immergé dans l'azote liquide. La traction est obtenue par le déplacement vers le bas de la traverse mobile.

Le courant électrique pour la mesure de la résistance électrique au cours de la traction est amené par les mors. Le tube cylindrique et la tige transmettant la contrainte à la cellule de charge sont isolés électriquement du bâti de la machine de traction.

Dispositif de compression.

Nous avons utilisé la même machine de traction à laquelle nous avons adapté un dispositif permettant la compression d'échantillons à la température de l'azote liquide (fig. 5).

L'échantillon est comprimé dans l'azote liquide entre deux plateaux en acier extra dur. Les échantillons sont des fils de Be ou de Mg de longueur 45 mm environ sur lesquels on a soudé préalablement 4 fils destinés aux mesures électriques. La compression se fait dans la partie centrale de l'échantillon, entre les deux prises de potentiel, ce qui présente l'inconvénient de ne pas réaliser une déformation sur toute la longueur de l'échantillon. On remédie à cela en effectuant une correction sur la valeur de la résistance de l'échantillon. Le taux de déformation n'est pas homogène dans toute la section. Le taux de déformation que l'on mesure ainsi est alors une valeur maximale.

Après l'écrouissage dans l'azote liquide, les échantillons sont placés, toujours sous azote liquide, dans des porte-échantillons identiques à ceux utilisés pour les expériences d'irradiation par les neutrons à 77 °K (fig. 6). Le dispositif utilisé pour les recuits est décrit au paragraphe 4-1-2 (Section II-C-1).

SECTION II-C - METHODES EXPERIMENTALES POUR L'ETUDE DE LA CREATION ET DE LA RESTAURATION DES DEFAUTS.

La présence de défauts dans un métal a pour effet de modifier certaines propriétés physiques telles que la résistivité électrique, la chaleur spécifique, le pouvoir thermoléctrique, le paramètre cristallin, la longueur de l'échantillon, la dureté, la limite élastique.... Les variations de ces propriétés physiques sont fonction de la nature des défauts et de leur concentration. Leurs mesures expérimentales renseignent donc sur les concentrations de défauts créés, sur les mécanismes d'élimination et sur certaines propriétés de ces défauts, énergies de migration en particulier.

Nous décrirons successivement les techniques de mesure de la résistivité électrique, de l'énergie emmagasinée et du frottement intérieur.

II-C-1 - RESISTIVITE ELECTRIQUE.

1 - Influence des défauts ponctuels sur la résistivité électrique.

Selon la règle de MATHIESSEN, la résistivité d'un métal est la somme de deux contributions, l'une dépendant de la température $\rho_i(T)$, l'autre athermique ρ_r .

$$\rho = \rho_i(T) + \rho_r$$

La composante $\rho_i(T)$ ou résistivité idéale est associée à l'agitation thermique des atomes du réseau. La composante ρ_r , ou résistivité résiduelle, représente le terme de résistivité dû à la diffusion des électrons par les atomes d'impuretés ou par les défauts ponctuels et étendus (dislocations, joints de grain, surface...). Celui-ci est, en première approximation, égal à :

$$\rho_r = \sum_j c_j \times \rho_j \quad (\text{pour les faibles concentrations})$$

c_j : concentration en défaut j ; *

ρ_j : contribution du défaut j à la résistivité électrique.

En effectuant les mesures de résistivité à très basse température $\rho_i(T)$ devient négligeable devant ρ_r . Les mesures de résistivité constituent donc un excellent et relativement simple moyen de détection des défauts ponctuels dans les cas des métaux suffisamment purs. Pour les faibles concentrations, l'augmentation de résistivité est donc proportionnelle au nombre de défauts. L'élimination des défauts s'accompagne de la restauration de la résistivité jusqu'à sa valeur initiale.

La résistivité électrique est une méthode relativement sensible, donc intéressante. Par contre, c'est une technique qui intègre les contributions propres à chaque type de défauts.

Au cours de la restauration, il est difficile, par les seules mesures de résistivité, de donner une interprétation des processus conduisant à l'élimination des défauts ponctuels. De plus, les résistivités des défauts élémentaires sont très mal connues. Leurs déterminations expérimentales sont en général délicates. LUCASSON et WALKER [26] ont déterminé pour différents métaux la valeur de la résistivité pour 1 % de paires de Frenkel. Celle-ci, pour la plupart des métaux étudiés, est voisine de la valeur de la résistivité du métal à la température ambiante ($\Delta\rho_{pF}/\% \text{ at.} \sim \rho_{293 \text{ K}}$). De façon théorique, VAN TORNE [27] et REALE [28] ont calculé les contributions à la résistivité des lacunes et des interstitiels dans le cas du béryllium et du magnésium. Les valeurs déterminées par ces auteurs sont données dans le tableau V.

	Lacunes	Interstitiels	
		Site tétraédrique	Site octaédrique
Béryllium	0,652 $\mu\Omega\text{cm}/\%$ [28]	0,249 $\mu\Omega\text{cm}/\%$ [27]	0,283 $\mu\Omega\text{cm}/\%$ [27]
	0,296 $\mu\Omega\text{cm}/\%$ [27]		
Magnésium	0,782 $\mu\Omega\text{cm}/\%$ [28]		

TABLEAU V.

Ces valeurs théoriques seront confrontées au cours des discussions avec les déterminations expérimentales tirées de nos résultats. Nous verrons que dans le cas du béryllium l'écart est important.

Pour la plupart des expériences d'irradiation, les défauts ponctuels créés ne sont pas indépendants les uns des autres. Au cours de l'irradiation ou des recuits ultérieurs, il y a formation de défauts complexes tels que multidéfauts, amas et boucles de lacunes ou d'interstitiels. La résistivité des défauts est alors modifiée. Par ailleurs, l'irradiation peut créer des configurations complexes de défauts, telles que les "zones de déplacement" ou plus simplement les cascades de déplacements. Ainsi, CORCIOVEI [29] calcule, pour une cascade de déplacements produits dans un volume restreint, une contribution à la résistivité inférieure à la somme de celles des défauts supposés isolés. De même, les multidéfauts, amas et boucles de défauts, ont des résistivités qui sont mal connues mais qui sont certainement inférieures à la somme des résistivités des défauts entrant dans leur composition.

2 - Variation de la résistivité électrique au cours de l'irradiation et de l'écrouissage.

2-1 - Irradiation.

Théoriquement et à suffisamment basse température, l'augmentation de la résistivité mesurée au cours de l'irradiation des métaux suit une loi de variation linéaire en fonction du flux,

Cela suppose que les défauts créés, en l'occurrence des paires de Frenkel, sont indépendants les uns des autres.

En fait, cela n'est vrai que pour de faibles irradiations par des particules de faible énergie. Hormis ces conditions expérimentales, on observe généralement un effet de saturation d'autant plus marqué que l'irradiation est plus importante.

Pour le béryllium et le magnésium la croissance sous irradiation est nulle. En conséquence, les variations de résistance mesurées au cours de l'irradiation sont dues uniquement aux variations de résistivité électrique.

2-2 - Ecrrouissage.

La variation de résistance électrique enregistrée au cours d'une déformation par traction est la somme de deux termes. L'un correspond à la variation de géométrie du fil. L'autre est le fait de la création dans le réseau de défauts ponctuels et de dislocations, qui produisent une augmentation $\Delta\rho$ de la résistivité électrique du métal.

A partir des renseignements de la courbe de traction, $\sigma = f(\epsilon)$, et de la variation de résistance de l'échantillon en fonction de son allongement, on peut calculer $\Delta\rho$ en fonction de ϵ . Le calcul suppose que la déformation se fait à volume constant, ce qui n'est vrai que dans le seul domaine de déformation plastique et tant que la section de l'échantillon reste homogène sur toute sa longueur.

On a :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho_0} = \frac{R}{R_1} \frac{1}{(1 + \epsilon_{pl})^2} - 1$$

$\Delta\rho$: augmentation de résistivité à 77 °K pour ϵ_{pl} donné

ρ_0 : résistivité initiale à 77 °K.

$$(\rho_0)_{Be} = 0,103 \cdot 10^{-6} \text{ } \Omega\text{cm}$$

$$(\rho_0)_{Mg} = 0,53 \cdot 10^{-6} \text{ } \Omega\text{cm.}$$

R : résistance de l'échantillon mesurée à 77 °K pour ϵ_{pl} donné.

R_1 : résistance à la fin de la déformation élastique.

ϵ_{pl} : allongement plastique.

Dans le cas du béryllium, le domaine de déformation élastique par traction à 77 °K est très réduit et mal défini. De plus, on n'observe pas de variation sensible de la résistance électrique dans ce domaine. Nous avons donc pris comme expression de $\Delta\rho / \rho_0$:

$$\frac{\Delta \rho}{\rho_0} \neq \frac{R}{R_0} \frac{1}{(1 + \epsilon_{pl})^2} - 1$$

R_0 : résistance de l'échantillon à 77 °K avant la déformation.

Par contre, pour le magnésium les courbes $\sigma = f(\epsilon)$ et $R = f(\epsilon)$ présentent un domaine de déformation élastique bien apparent, et la variation de résistance électrique dans ce domaine est bien définie. Dans ce cas, les variations de résistivité, dues à la création de défauts, sont calculées avec la formule applicable dans le cas général.

3 - Etude de la restauration par les mesures de résistivité électrique.

3-1 - Mise en évidence du spectre de restauration.

Nous avons adopté pour l'étude de la restauration par mesure de la résistivité une technique de réchauffage par recuits isochrones. La figure 7 représente schématiquement une expérience de réchauffage de l'échantillon suivant la méthode des recuits isochrones, ainsi que les variations correspondantes de la résistivité.

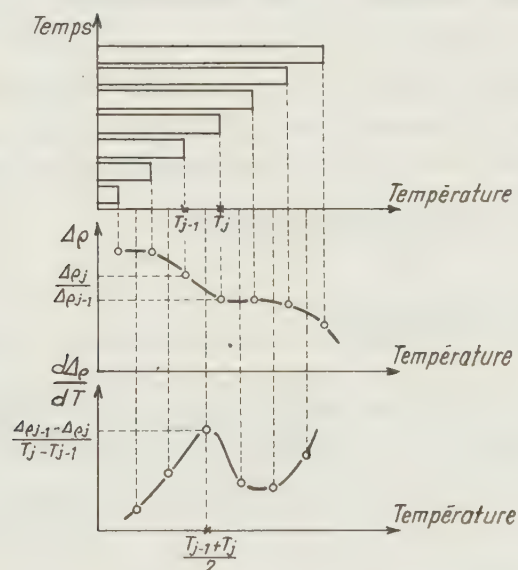


Fig. 7 - Expérience de recuits isochrones.

L'échantillon est porté pendant un temps de recuit constant Δt à des températures régulièrement croissantes de pas ΔT . Après chaque recuit, la résistivité de l'échantillon est mesurée à la température de référence (température de l'azote liquide par exemple). Les excès résiduels de résistivité, mesurés après un recuit à la température T_j , sont reportés à cette même température sur la courbe de recuits isochrones $\Delta \rho = f(T)$. Cette représentation introduit d'elle-même un

décalage vers les basses températures qui peut être estimé grossièrement à $\frac{\Delta T}{2}$. La courbe $\frac{d\Delta\rho}{dT} = f(T)$ exprime pour chaque intervalle de température ($T_j - T_{j-1}$), la variation moyenne de résistivité par ($^{\circ}\text{K}$) soit :

$$\frac{\Delta\rho_{j-1} - \Delta\rho_j}{T_j - T_{j-1}}$$

Celle-ci est affectée à la température moyenne $\frac{T_{j-1} + T_j}{2}$.

Cette représentation est communément appelée courbe dérivée de la courbe de recuits isochrones.

Du choix des pas Δt et ΔT dépend la position en température du stade de recuit. Pour la majeure partie de nos expériences, nous avons effectué des recuits isochrones de 10 minutes/ 10°K . Toutefois, dans le cas des irradiations à 4°K , nous avons choisi un pas en température variable et croissant en fonction de la température suivant une loi linéaire $\Delta T \approx \frac{1}{20} T$ (T est la température de recuit). Pour ces expériences, nous avons adopté des représentations en $\Delta\rho = f(\log T)$ et $\frac{d\Delta\rho}{d\log T} = f(\log T)$ qui permettent une meilleure résolution des stades de recuit à basse température.

Nous avons également effectué quelques expériences de réchauffage linéaire afin de nous mettre dans des conditions identiques à celles utilisées pour les expériences d'énergie emmagasinée. Nous avons ainsi vérifié que la différence de programmes de réchauffage était à l'origine de l'écart en température observé ($\sim 10^{\circ}$) entre les résultats de résistivité électrique (isochrones : 10 min/ 10°K) et les résultats d'énergie emmagasinée (chauffage linéaire : $2,5^{\circ}/\text{min}$).

3-2 - Cinétiques de restauration et énergies d'activation.

3-2-1 - Cinétique de restauration.

Par l'étude de la restauration isotherme de la résistivité au cours d'un stade simple, on peut obtenir des renseignements sur les processus d'élimination des défauts. Une expérience de recuits isothermes est représentée schématiquement par la figure 8.

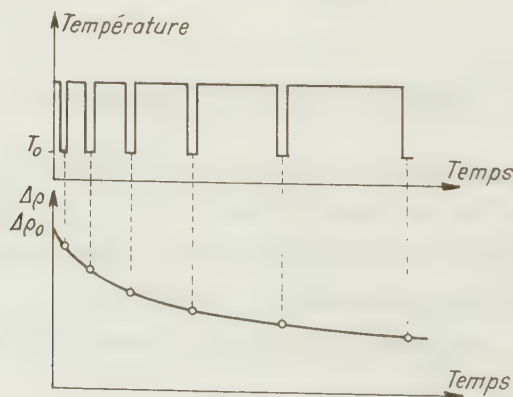


Fig. 8 - Expérience de recuits isothermes.

Les processus de restauration des défauts sont en général complexes. Toutefois l'application des lois classiques observées en cinétique chimique permet, dans les cas favorables, d'envisager des mécanismes de restauration simples.

D'une façon générale, la vitesse de disparition des défauts en sursaturation est de la forme :

$$\frac{dc}{dt} = - F (c, q_1, q_2, \dots, q_n) \exp \left(- \frac{E_m}{kT} \right)$$

c : concentration des défauts participant à la réaction
 $q_1, q_2, \dots, q_n$: différents paramètres
 E_m : énergie de migration des défauts mobiles
 T : température du recuit en °K
 k : constant de Boltzmann,

Si on suppose que les paramètres $q_1 \dots q_n$ sont indépendants de la température et du temps, on a :

$$\frac{dc}{dt} = - K_o c^\phi \exp \left(- \frac{E_m}{kT} \right) = - K c^\phi$$

ϕ : ordre de la réaction,

Pour la migration aléatoire des lacunes l'expression de K est la suivante :

$$K = Z v_D \exp \left(\frac{S_m}{k} \right) \exp \left(- \frac{E_m}{kT} \right)$$

Z : nombre de possibilités de saut du défaut sur un site voisin équivalent
 v_D : fréquence d'agitation thermique
 S_m : entropie de migration du défaut,

Dans le cas de nos mesures de résistivité, on a :

$$\frac{d \Delta \rho}{dt} = - K' (\Delta \rho)^\phi$$

Pour $\phi = 1$ on obtient par intégration :

$$\left(\frac{1}{\Delta \rho_o} \right)^{\phi - 1} - \left(\frac{1}{\Delta \rho} \right)^{\phi - 1} = (1 - \phi) K'_1 t$$

L'ordre de la réaction peut être déterminé graphiquement en portant $\log \left(- \frac{d \Delta \rho}{dt} \right)$ en fonction de $\log \Delta \rho$. La pente de la droite donne la valeur de ϕ .

Pour $\phi = 1$, on a :

$$\Delta \rho = \Delta \rho_0 \exp (- K'_2 t)$$

l'ordre $\phi = 1$ est vérifié par la relation linéaire :

$$\log \frac{\Delta \rho_0}{\Delta \rho} = K'_2 t$$

L'obtention d'un ordre de réaction $\phi = 1$ est interprété par un processus d'élimination d'un seul type de défaut indépendant (lacune isolée, interstitiel isolé) sur des puits fixes non saturables ou par l'annihilation de paires de Krenkel. Un ordre $\phi = 2$ est interprété comme le fait d'une réaction de recombinaison de deux défauts indépendants en concentrations égales, l'un ou les deux défauts pouvant être mobiles à la température de l'expérience.

3-2-2 - Energies d'activation.

L'utilisation des recuits isothermes permet la détermination des énergies de migration des défauts. Si au cours d'un stade de recuit le processus d'élimination des défauts est unique et si on admet que dans la relation

$$\frac{dc}{dt} = - F(c, q_1 \dots q_n) \exp \left(- \frac{E_m}{kT} \right)$$

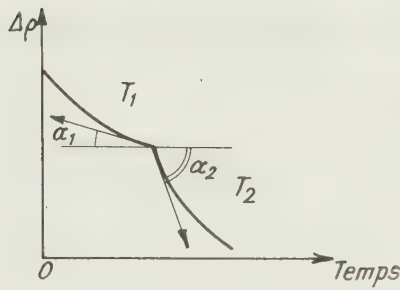
les paramètres $q_1, q_2 \dots q_n$ sont indépendants de la température, la vitesse d'élimination des défauts $\frac{dc}{dt}$ est une fonction de la concentration des défauts et de la probabilité de saut des défauts. Celle-ci varie avec la température comme $\exp (- E_m/kT)$. Pour déterminer l'énergie de migration des défauts, nous avons utilisé deux méthodes : méthode de Dorn ou méthode des tangentes et méthode de Meehan et Brinkman.

Dans le cas de la méthode des tangentes, on détermine dans un état donné de la restauration les vitesses instantanées de disparition des défauts à deux températures T_1 et T_2 .

La détermination de l'énergie d'activation par la méthode de Meehan et Brinkman s'effectue à partir d'une courbe de recuits isochrones et d'une courbe de recuits isothermes relatives à deux échantillons ayant une même concentration initiale de défauts. On détermine pour deux températures les temps de recuit conduisant à une restauration identique de la résistivité électrique.

Les schémas de principe des deux méthodes utilisées ainsi que les relations donnant l'énergie d'activation, sont reportés sur la figure 9.

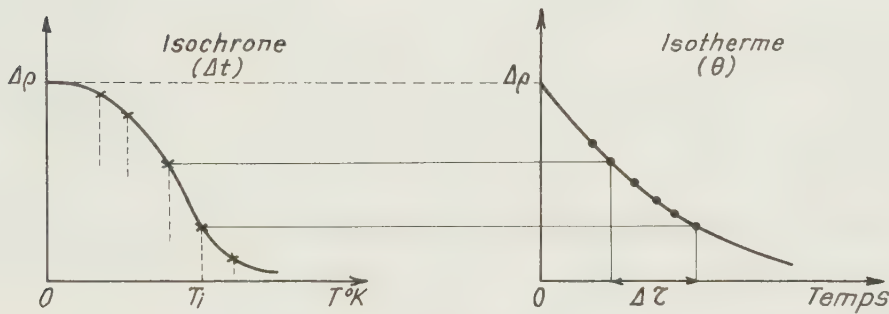
Méthode de Dorn



$$E_m = k \frac{\text{Log } \frac{m_2}{m_1}}{\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}}$$

$$m = \text{tg} \alpha$$

Méthode de Meehan et Brinkman



$$E_m = k \frac{\text{Log } \frac{\Delta \tau}{\Delta t}}{\frac{1}{\theta} - \frac{1}{T_i}}$$

Fig. 9. Méthodes utilisées pour la détermination des énergies d'activation.

4 - Dispositifs expérimentaux.

4-1 - Mesures électriques et dispositifs de recuits utilisés à Grenoble.

4-1-1 - Mesures électriques.

Les mesures de résistance électrique ont été effectuées par la méthode dite des 4 fils. Pour mesurer la résistance électrique de l'échantillon, on mesure la différence de potentiel V qui apparaît entre deux points de l'échantillon lorsque celui-ci est parcouru par un courant d'intensité I . I est obtenu par la mesure de V_R , tension aux bornes d'une résistance étalon (R_{et}) parcourue par le courant.

La mesure de V est effectuée par une méthode d'opposition au moyen d'un potentiomètre Honeywell de haute précision. L'utilisation d'un amplificateur à courant continu dans le circuit détecteur de zéro (limite de détection : $0,03 \cdot 10^{-6}$ volt) donne une très grande sensibilité

à la méthode. Le courant fourni par des accumulateurs est de l'ordre de 0,1 ampère. Le schéma de l'installation de mesure électrique est représenté sur la figure 10.

La précision relative de nos mesures peut être estimée par un calcul d'erreur simple :

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{\Delta V}{V} + \frac{\Delta I}{I}$$

$$\frac{\Delta V}{V} = 3 \cdot 10^{-4} \text{ pour } V \sim 100 \mu V$$

$$\frac{\Delta I}{I} = \frac{\Delta V_R}{V_R} + \frac{\Delta R_{et}}{R_{et}} = 1,5 \cdot 10^{-4} \quad \left/ \quad \frac{\Delta V_R}{V_R} = 10^{-4} \text{ pour } I = 100 \text{ mA} \right.$$

$$\frac{\Delta R}{R} = 4,5 \cdot 10^{-4}$$

$$\frac{\Delta \rho}{\rho} \neq 4,5 \cdot 10^{-4}$$

$$\frac{\Delta R_{et}}{R_{et}} = 5 \cdot 10^{-5} \text{ pour une température du local pouvant varier de } \pm 2,5^\circ$$

(coefficient de température de $R_{et} = 10^{-5}$)

Dans le cas du magnésium, qui a une résistivité de l'ordre de $0,5 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ cm}$ à la température de référence soit 77° K , les mesures de résistivité sont effectuées avec une incertitude qui est de : $\Delta \rho = 2,2 \cdot 10^{-10} \Omega \text{ cm}$.

Les dimensions géométriques de l'échantillon n'étant pas modifiées par l'irradiation, on calcule la résistivité par la relation :

$$\frac{\Delta \rho}{\rho_{TR}} = \frac{\Delta R_{TR}}{R_{TR}}$$

$\Delta \rho$: augmentation de résistivité

ΔR_{TR} : augmentation de résistance mesurée à la température de référence TR

ρ_{TR} : résistivité du métal à la température de référence TR

R_{TR} : résistance de l'échantillon à la température de référence TR.

D'autre part :

$$\frac{\rho_{TR}}{\rho_{293 \text{ K}}} \neq \frac{R_{TR}}{R_{293 \text{ K}}}$$

$\rho_{293 \text{ K}}$: résistivité du métal à 293° .

$R_{293 \text{ K}}$: résistance de l'échantillon à 293° K .

On déduit donc :

$$\Delta \rho \neq \rho_{293 \text{ } ^\circ\text{K}} \frac{\Delta R_{\text{TR}}}{R_{293 \text{ } ^\circ\text{K}}}$$

Connaissant $\rho_{293 \text{ } ^\circ\text{K}}$ qui varie peu avec la concentration en impuretés, on peut ainsi calculer $\Delta \rho$ sans avoir à déterminer les dimensions géométriques de chaque échantillon. Les résistivités à 293 °K du Be SR et du Mg 99,95 % sont égales à :

$$(\rho_{293 \text{ } ^\circ\text{K}})_{\text{Be}_{\text{SR}}} = 3,3 \text{ } \mu\Omega\text{cm}$$

$$(\rho_{293 \text{ } ^\circ\text{K}})_{\text{Mg}_{99,95 \%}} = 4,41 \text{ } \mu\Omega\text{cm}.$$

Dans le cas du magnésium où nous avons étudié différentes qualités de métal, les calculs de l'augmentation de résistivité ont été faits en utilisant cette même valeur de la résistivité à 293 °K. L'erreur effectuée est tout à fait négligeable en valeur relative. En effet, la résistivité idéale du magnésium à 20 °C peut être estimée en soustrayant à la valeur de $\rho_{293 \text{ } ^\circ\text{K}}$ celle de la résistivité à 4 °K prise comme valeur par excès de la résistivité résiduelle (ρ_r).

On détermine :

$$(\rho_i)_{293 \text{ } ^\circ\text{K}} = 4,41 - \frac{4,41}{120} = 4,38 \text{ } \mu\Omega\text{cm}$$

avec :

$$\left(\frac{\rho_{293 \text{ } ^\circ\text{K}}}{\rho_{4 \text{ } ^\circ\text{K}}} \right)_{\text{Mg}_{99,95 \%}} = 120$$

4-1-2 - Dispositifs de recuit.

Dispositif utilisé pour le recuit des échantillons irradiés par des neutrons ou écouis à 77 °K.

Les échantillons sous forme de fils ou de lames sont placés entre deux plaquettes d'aluminium oxydées anodiquement afin d'assurer un parfait isolement électrique (fig. 6). Cet ensemble constitue le porte-échantillon qui est placé en pile. Dans le cas des expériences d'écrouissage, les échantillons comprimés à 77 °K sont placés sans réchauffage dans des porte-échantillons identiques à ceux utilisés pour les irradiations (fig. 6).

Pour l'étude de la restauration après irradiation ou écrouissage, le porte-échantillon est ensuite introduit sans réchauffage à l'intérieur d'un four en aluminium présentant une faible inertie thermique (fig. 6). Le four est enfin placé à l'intérieur de l'enceinte de recuit qui utilise le principe de la "cloche à plongeur" (fig. 10). On peut faire varier le niveau d'azote liquide par rapport au four en admettant dans l'enceinte une plus ou moins grande pression d'hélium. Les mesures de résistance électrique sont effectuées dans l'azote liquide sous une hauteur de liquide constante. L'immersion du four s'effectue par simple mise à la pression atmosphérique de l'enceinte de recuit.

Le four utilisé est un four à résistance bobinée. Dans le domaine de température 77 °K - 320 °K, le palier de température est atteint en moins de 90 secondes, dont 20 au-dessus de la température du recuit précédent. Le refroidissement à la température de l'azote liquide intervient en moins de 30 secondes. Ces temps sont à comparer à la durée du palier de température qui est généralement de 10 minutes.

Un thermocouple chromel-alumel placé à l'intérieur d'une des plaquettes constituant le porte-échantillon mesure la température de l'échantillon. Un second thermocouple placé sous l'enroulement du four commande le dispositif de régulation. Celle-ci se fait par "pulses" de chauffage commandés par un enregistreur SEFRAM de type "Graphispot" utilisé en relais galvanométrique.

La régulation s'effectue selon le schéma suivant. Sur le potentiomètre d'un dispositif de mesure de la tension par une méthode d'opposition, on affiche la valeur de la tension correspondant à la température du recuit d'après l'étalonnage du thermocouple-four. L'échantillon étant à la température de l'azote liquide, l'équilibre n'est pas réalisé et l'enregistreur SEFRAM utilisé en galvanomètre n'est pas au zéro. Lorsque, au cours du chauffage, la température du four approche de la température de recuit, la puissance fournie au four est réduite et ajustée pour la régulation. Lorsque la température du recuit est atteinte, l'enregistreur est au zéro et fonctionne à partir de ce moment en relais galvanométrique. Au zéro, le chauffage de régulation est coupé. Si la température s'abaisse légèrement, le four est automatiquement réalimenté. La régulation s'effectue ainsi par "pulses" de chauffage successifs. Les fluctuations de température de l'enroulement parviennent totalement amorties sur l'échantillon. Sa température est maintenue constante à $\pm 0,25$ °C.

Dispositif pour le recuit des échantillons irradiés par les électrons à 20 °K.

L'échantillon est placé à l'intérieur d'un porte-échantillon qui lui assure une bonne rigidité mécanique sans diminuer ni l'importance du faisceau ni l'énergie des électrons. Pour cela une fenêtre circulaire de 3 cm de diamètre est pratiquée dans le porte-échantillon. L'échantillon est isolé électriquement. Il est de plus isolé thermiquement du porte-échantillon du fait même qu'il n'est pas en contact avec ce dernier sur la plus grande partie de sa longueur. Ce montage de l'échantillon nous a permis d'effectuer les recuits aux températures supérieures à 77 °K en utilisant un chauffage par effet Joule que nous décrirons plus loin.

Dans le cas des irradiations par les électrons, il est possible de faire des mesures de résistance électrique au cours de l'irradiation. Après irradiation, l'alimentation du cryostat en hydrogène liquide est arrêtée. L'échantillon, après vaporisation de l'hydrogène, se réchauffe très lentement dans le cryostat jusqu'à la température ambiante. En mesurant au cours de ce réchauffage la résistance électrique de l'échantillon, on peut espérer suivre la disparition des défauts ponctuels créés par irradiation. La température de l'échantillon est déterminée au moyen d'un thermocouple chromel-constantan de 0,07 mm de diamètre, soudé par point sur l'échantillon. Cette méthode donne de bons résultats avec le béryllium entre 20 et 77 °K, car la résistivité idéale de ce métal varie peu dans ce domaine de température ($R_{77\text{ °K}}/R_{20\text{ °K}} \neq 1,5$), sans doute en raison de la température de Debye élevée pour ce métal ($T_D = 1\,160$ °K). Dans le cas du magnésium, cette méthode n'est pas valable ($R_{77\text{ °K}}/R_{20\text{ °K}} \neq 9,1$ et $T_D = 406$ °K).

Pour l'étude de la restauration au-dessus de 77 °K, l'échantillon après irradiation est brutalement réchauffé jusqu'à 77 °K. Il est ensuite transféré sous azote liquide dans un dispositif de recuit semblable à celui utilisé pour la restauration d'échantillons irradiés par les neutrons à 77 °K (fig. 10). La différence essentielle consiste dans le mode de chauffage de l'échantillon qui est obtenu ici en faisant passer un courant électrique dans l'échantillon. La température de recuit est atteinte en moins de 30 secondes et définie à ± 1 °C. La température est connue au moyen du thermocouple soudé sur l'échantillon. Celui-ci commande en outre un dispositif de régulation semblable à celui décrit précédemment. Nous avons vérifié que le gradient de température était dans tous les cas inférieur à 2° entre les prises de potentiel. Nous avons utilisé des fils dont les dimensions étaient en général : longueur : 20 cm ; longueur entre prises de potentiel : 10 cm ; diamètre : 0,05 cm. Des recuits isochrones de 10 minutes étaient effectués tous les 10 degrés.

4-2 - Mesures électriques et dispositifs de recuit utilisés à Munich dans le cas des irradiations à 4 °K.

Nous avons utilisé pour ces expériences les dispositifs réalisés autour de la boucle d'irradiation à la température de l'hélium liquide (4 °K) [30] [31].

Ce dispositif permet l'étude de la variation de la résistivité électrique au cours de l'irradiation, ainsi que l'étude de la restauration depuis 4 °K. Le porte-échantillon peut contenir plusieurs échantillons (2 Be SR, 1 Mg 99,95 %, 1 Mg 99,995 % dans le cas de nos expériences).

Les mesures de résistance sont effectuées également par application de la loi d'Ohm. Le courant I est fourni par une alimentation stabilisée en courant de grande précision ($\Delta I/I = 10^{-5}$ pour $0,1 \text{ A} < I < 1 \text{ A}$). La mesure de l'intensité I est obtenue en mesurant la tension aux bornes d'une résistance étalon parcourue par le courant. Les valeurs de la tension aux bornes des prises de potentiel des différents échantillons et de la résistance étalon sont déterminées au moyen d'un voltmètre digital DANA de haute sensibilité (seuil de détection : 10^{-7} volt).

Toutes les mesures sont effectuées pour les deux sens de circulation du courant. Ce dispositif permet la détection de variations de résistivité électrique inférieures à $10^{-11} \text{ } \Omega \text{ cm}$.

Le réchauffage des échantillons par la méthode des recuits isochrones est réalisé au moyen d'un four à résistance. La température des échantillons est mesurée par un thermocouple cuivre-constantan. La température de recuit est définie à $\pm 0,5$ °C. Le temps mis pour atteindre le palier de température est de l'ordre de quelques minutes.

II-C-2 - ENERGIE EMMAGASINEE

1 - Energie emmagasinée dans un métal au cours d'une irradiation ou d'un écrouissage.

Pour déplacer de son site un atome du réseau par irradiation, l'énergie à fournir à l'atome doit être supérieure à l'énergie de seuil de déplacement, généralement prise égale à

25 eV. Lorsque l'atome se fixe en position interstitielle, son énergie décroît en se transformant en agitation thermique jusqu'à une valeur correspondant à l'énergie de formation d'un atome interstitiel. Celle-ci est de l'ordre de 5 eV. La figure 2 représente la variation de l'énergie du réseau en cours de la création d'une paire. Après irradiation, une certaine fraction de l'énergie des particules incidentes reste emmagasinée dans le métal correspondant à l'énergie de formation des défauts ponctuels présents à l'état métastable.

Ce schéma relativement simple peut être étendu au cas des défauts ponctuels créés par écrouissage malgré la plus grande complexité des mécanismes de création des défauts et des défauts eux-mêmes. Il est plus difficile d'effectuer un bilan d'énergie dans le cas de l'écrouissage. Cependant, VAN DEN BEUKEL [32], dans le cas du cuivre et de l'argent déformés par compression à 77 °K, a estimé le rapport de l'énergie emmagasinée par le métal du fait de la présence des défauts ponctuels au travail de déformation dépensé : ce rapport est de l'ordre de 2 %.

Pour une irradiation, la variation de l'énergie emmagasinée par un métal en fonction du flux intégré est théoriquement proportionnelle à la concentration de défauts supposés indépendants. Expérimentalement, de même que pour les mesures de résistivité électrique, la variation est linéaire pour les faibles doses et tend vers une valeur de saturation pour les fortes doses. L'ordre de grandeur de l'énergie de formation d'une paire de Frenkel étant mieux connu que celui de sa résistivité, l'estimation des concentrations de défauts effectuée à partir des mesures d'énergie emmagasinée est généralement meilleure que celle effectuée à partir des mesures de résistivité.

2 - Libération au cours du recuit, de l'énergie emmagasinée.

Pour réchauffer un échantillon non irradié suivant une loi linéaire de variation de la température ($v = \frac{dT}{dt}$), il faut lui fournir une puissance :

$$P_1 = mC \frac{dT}{dt}$$

Dans le cas d'un échantillon irradié réchauffé suivant le même programme, l'énergie libérée en fonction de la température s'ajoute à la puissance fournie. L'énergie conférée à l'échantillon est alors :

$$P_2 = m \left(C + \frac{dE}{dT} \right) \frac{dT}{dt}$$

m	: masse des échantillons
C	: chaleur spécifique de l'échantillon ($C = f(T)$)
dE/dT	: énergie libérée /g/°
dT/dt	: vitesse de chauffage.

Du point de vue expérimental, la libération de l'énergie emmagasinée se traduit par des anomalies apparentes de chaleur spécifique. Ainsi si on réchauffe en leur fournissant la

même puissance un échantillon irradié et un échantillon témoins de même poids, la libération d'énergie emmagasinée par l'échantillon irradié se traduit par une température plus élevée pour celui-ci.

Les dispositifs expérimentaux que nous avons utilisés permettent de mesurer directement la vitesse de libération de l'énergie qui est proportionnelle à la vitesse d'élimination des défauts. Les spectres d'énergie libérée au cours du réchauffage sont en général tout à fait comparables aux courbes dérivées obtenues par résistivité électrique.

Les spectres d'énergie libérée comme les mesures de résistivité électrique permettent d'obtenir des renseignements sur les cinétiques d'élimination des défauts. Du pic d'énergie libérée obtenu expérimentalement, on peut déduire, par intégration graphique, la variation en fonction de la température de la concentration relative de défauts n/n_0 . On compare la courbe expérimentale avec les courbes $n/n_0 = f(T)$ calculées théoriquement pour les ordres de réaction $\phi = 1$ ou $\phi = 2$. S'il y a accord entre la courbe expérimentale et une courbe théorique, on peut déduire l'ordre apparent de la réaction conduisant à l'élimination des défauts dans ce stade.

L'énergie d'activation E_m peut également être déterminée à partir du pic d'énergie, à la condition de connaître l'ordre de réaction de la cinétique correspondante. On a :

$$\frac{dc}{dt} = -K F(c) \exp\left(-\frac{E_m}{kT}\right)$$

Si on suppose que l'énergie libérée est proportionnelle à la concentration de défauts qui s'éliminent, on a :

$$\frac{dE}{dt} = -K'' F(E) \exp\left(-\frac{E_m}{kT}\right)$$

le maximum d'un pic d'énergie est atteint lorsque :

$$\frac{d^2 E}{dt^2} = 0$$

ou lorsque :

$$\frac{d^2 E}{dT^2} = 0 \quad \left(v = \frac{dT}{dt}\right)$$

Dans le cas d'une cinétique du premier ordre, on a $F(E) \equiv E$. On peut dans ce cas déterminer l'énergie d'activation E_m du processus physique à partir de l'enregistrement du pic d'énergie en fonction de la température. On a pour le maximum du pic :

$$E_m = -\frac{1}{E} \left(\frac{dE}{dT}\right)_{\max} k T_{\max}^2$$

(E : énergie encore emmagasinée à $T_{\max}$).

De même, pour une cinétique du second ordre :

$$F(E) \approx E^2$$

$$E_m = - \frac{2}{E} \left(\frac{dE}{dT} \right)_{\max} k T_{\max}^2$$

3 - Dispositifs expérimentaux.

Nous avons utilisé le dispositif calorimétrique réalisé à la Section Physico-Chimie et Basses Températures de Grenoble, et commercialisé sous la dénomination "Calorimètre à puissance compensée C.P.C. 600" [33]. Le schéma de l'appareil est représenté à la figure 11.

On mesure par cette méthode non pas les écarts de température qui apparaissent entre l'échantillon irradié et le témoin au cours d'un effet thermique, mais directement l'apport de puissance de chauffage nécessaire pour annuler cet écart de température.

L'échantillon témoins et l'échantillon irradié sont montés séparément sur deux micro-résistances chauffantes R_T et R_A , munies de thermocouples et suspendues à l'intérieur d'un calorimètre adiabatique comportant un écran thermique et fonctionnant sous vide secondaire.

Par une chaîne électronique très sensible, le témoin est asservi en température (θ_a) par régulation de la puissance appliquée sur R_T et suivant un programme rigoureusement linéaire. Une deuxième chaîne identique annule en permanence l'écart ΔT entre les deux échantillons.

La différence entre les puissances appliquées sur les deux échantillons, enregistrée en fonction de la température absolue, représente la mesure quantitative directe des effets thermiques à mesurer sur l'échantillon irradié (sensibilité ± 100 microwatts).

Une troisième chaîne électronique permet de réguler l'écran thermique ($\Delta \theta_e$) à la température de l'échantillon.

Ce calorimètre est spécialement agencé pour la mise en place des échantillons à basse température sous bain de liquide cryogénique (azote liquide ou néon liquide).

Les échantillons utilisés sont des disques de 20 mm de diamètre et de 2 mm d'épaisseur. L'état de surface des échantillons est particulièrement soigné afin d'obtenir un transfert thermique optimal entre l'échantillon et les micro-résistances chauffantes.

Les mesures d'énergie libérée ont été effectuées suivant une loi de variation linéaire de la température. La vitesse était de 2,5°/minute. L'enregistrement donne $\frac{dE}{dt}$ en fonction du temps. L'énergie libérée, en millicalories par gramme et par degré, est :

$$\frac{dE}{dT} = \frac{1}{4,18} \left(\frac{dE}{dt} \right) \cdot \frac{dt}{dT} \cdot \frac{s}{P}$$

$\frac{dE}{dt}$: énergie libérée par unité de temps exprimée en unités arbitraires d'enregistrement

s : sensibilité d'enregistrement en mW/unité d'enregistrement

$\frac{dt}{dT}$: inverse de la vitesse de montée en température
P : masse de l'échantillon en grammes.

L'utilisation du réchauffage à la vitesse de 2,5°/minute introduit systématiquement un décalage en température d'environ $\Delta T = + 10^\circ C$ par rapport aux courbes dérivées de résistivité électrique. Nous avons vérifié que la différence des techniques de réchauffage était bien à l'origine de l'écart observé (cf. chapitre II - Section II-C-1).

II-C-3 - FROTTEMENT INTERIEUR ET MESURES DE MODULE ELASTIQUE.

Les défauts ponctuels créés dans un métal par irradiation modifient ses propriétés mécaniques : module de cisaillement et module d'Young, dureté, limite élastique, allongement à la rupture.

Il en est de même pour les défauts d'écrouissage. Toutefois, dans ce dernier cas, les effets beaucoup plus importants dus aux dislocations s'ajoutent à ceux provoqués par la présence des défauts.

1 - Frottement intérieur.

Le frottement intérieur est la propriété que présentent les corps solides soumis à des contraintes cycliques d'absorber de l'énergie, c'est-à-dire de transformer de l'énergie mécanique en chaleur.

On distingue généralement plusieurs types de frottement intérieur : frottement interne de relaxation, de résonance, d'hystérésis mécanique.

Dans le cas d'un frottement intérieur dû à un processus de relaxation, la dissipation d'énergie dans le cristal est due au déphasage dans le temps de la déformation par rapport à la contrainte cyclique appliquée (fig. 12). Ce type de frottement intérieur est directement lié au comportement anélastique des solides.

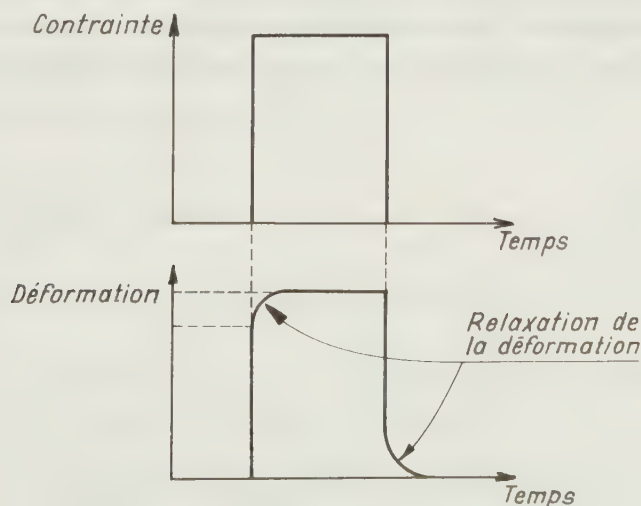


Fig. 12 - Phénomène de relaxation.

Le frottement intérieur de relaxation peut être associé à des déplacements atomiques, d'où son intérêt pour l'étude de la restauration des défauts ponctuels. Lorsqu'on soumet à une contrainte un cristal à l'intérieur duquel des défauts ponctuels ont créé des distorsions asymétriques, on peut favoriser la réorientation de ces défauts dans des sites équivalents dont les conditions d'occupation sont plus favorables. On observe au bout d'un certain temps une nouvelle répartition d'équilibre avec occupation préférentielle de certains sites. Le frottement intérieur de relaxation est donc spécifique de certains types de défauts. On ne peut donc pas obtenir des renseignements sur n'importe quels types de défauts introduits par irradiation ou par écrouissage.

Lorsque les mesures de frottement intérieur en fonction de la température mettent en évidence un pic de relaxation lié à la présence des défauts, on peut déterminer l'énergie de réorientation du défaut responsable qui peut être inférieure à son énergie de migration. En raison de sa sélectivité, l'observation d'un pic de frottement intérieur de relaxation peut être d'une grande utilité pour l'interprétation de la restauration.

Dans le cas d'un pic de frottement intérieur par processus de relaxation, le maximum du pic est atteint pour

$$\omega \tau = 1$$

ω : fréquence de la contrainte cyclique

τ : temps de relaxation du phénomène physique.

Pour les phénomènes de relaxation faisant appel à des sauts atomiques, le temps de relaxation varie suivant une loi d'Arrhénius :

$$\tau = \tau_0 \exp - \frac{E_m}{kT}$$

La détermination d'un pic de frottement intérieur se ramène donc à mesurer le frottement intérieur en fonction de la température. Si on réalise l'expérience pour deux fréquences différentes, on observe un déplacement du maximum du pic qui permet de mesurer l'énergie d'activation du phénomène physique. Plus simplement, mais généralement de façon très approchée, on peut déduire l'énergie d'activation par la largeur à mi-hauteur de la courbe de relaxation $\delta = f \left(\frac{1}{T} \right)$ (fig. 13).

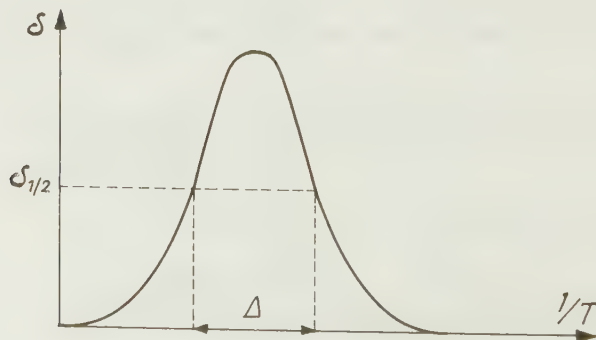


Fig. 13 - Méthode pour déterminer de façon approchée l'énergie d'activation d'un processus de relaxation.

On a :

$$\Delta \left(\frac{1}{T} \right) = 2,63 \frac{R}{E_m}$$

R = constante des gaz parfaits.

2 - Variation de module élastique.

Dans le domaine élastique, la contrainte de cisaillement et la déformation induite dans un monocristal sont reliées par le module de cisaillement

$$G = \frac{\sigma}{\epsilon_e + \epsilon_D}$$

La déformation est la somme d'un terme ϵ_e correspondant à la déformation élastique du réseau et d'un terme ϵ_D dû à la déformation réversible des arcs de dislocations entre leurs points d'ancrage. Ce dernier terme dépend de façon complexe du nombre de dislocations, de leur nature, et du nombre de points d'ancrage. On voit donc que le module de cisaillement est sensible aux variations de la densité des dislocations et du nombre de points d'ancrage. Les variations du module peuvent donc rendre compte des réarrangements de dislocations au cours du recuit d'échantillons irradiés ou écrouis et des interactions entre défauts ponctuels et dislocations. Ces variations de module élastique sont généralement associées à des variations de frottement intérieur.

D'autre part, de nombreux auteurs ont signalé dans le cas des matériaux irradiés des variations de module élastique de signes différents. La variation la plus généralement admise est une augmentation du module de l'ordre du %, sensible dès les faibles doses d'irradiation. Celle-ci tend très rapidement vers la saturation (pour $\phi = 10^{12} \text{ n/cm}^2$) dans le cas du cuivre. On l'attribue à un ancrage des dislocations par les défauts. D'autres expérimentateurs ont observé une diminution importante du module (de l'ordre de 10 %) après une forte irradiation ($\phi \sim 10^{19} \text{ n/cm}^2$). Celle-ci est généralement attribuée à un effet élastique lié à la présence dans le volume des défauts ponctuels. Cet effet de l'irradiation sur le module élastique sera abordé plus en détail au cours de la discussion portant sur la restauration des défauts ponctuels créés par irradiation dans le magnésium (Chapitre IV).

3 - Dispositifs expérimentaux.

Les expériences de frottement intérieur ont été effectuées dans la gamme de température 77 - 700 °K.

Dans le cas des défauts créés par irradiation à 77 °K dans le Mg, HILLAIRET et TRABUT [34] ont étudié les variations du frottement intérieur et du module de cisaillement élastique en fonction de la température entre 77 et 520 °K. L'appareil utilisé est un pendule de torsion inversé, fonctionnant à basse fréquence (domaine de fréquences possibles : 0,1 à 5 hertz)

et permettant le montage des échantillons à la température de l'azote liquide. Les échantillons sont des fils de diamètre pouvant varier entre 0,5 et 1,5 mm, de longueur 100 mm environ. Lorsque l'échantillon est mis en place, il se situe dans l'axe d'un four constitué par un épais cylindre de cuivre sur lequel est bobiné une résistance électrique de chauffage. Le transfert de chaleur du four à l'échantillon s'effectue par conduction dans l'hydrogène gazeux ($p_{H_2} = 2$ torrs). Le gradient thermique le long du fil est inférieur au degré. La température est déterminée à l'aide d'un thermocouple chromel-alumel placé dans la paroi cylindrique du four, très près de l'échantillon. Le chauffage se fait suivant un programme linéaire (1°/minute) commandé par une thermosonde placée sous le bobinage du four.

D'autres expériences ont été effectuées, notamment après écrouissage du béryllium, en utilisant un pendule de KE. Celui-ci est un pendule de type direct (fig. 14) adapté à l'étude des fils dans le domaine de températures 20 °C - 700 °C. Le domaine de fréquence des oscillations est de l'ordre du hertz. Le chauffage de l'échantillon est effectué sous vide, le four étant disposé à l'extérieur de l'enceinte. Sa température est mesurée au moyen d'un thermocouple situé sur le mors fixe de serrage de l'échantillon.

Pour les deux types d'appareils, le frottement interne est mesuré par le décrétement logarithmique δ des oscillations libres du pendule. Le décrétement logarithmique se définit comme le logarithme naturel du rapport de deux amplitudes successives. A chaque température on effectue la mesure de la période des oscillations. On atteint ainsi indirectement les variations de module de cisaillement élastique de l'échantillon au cours de la restauration. En effet, la période est inversement proportionnelle à la racine carrée du module.

II-C-4 - MICROSCOPIE ELECTRONIQUE.

Les observations au microscope électronique par transmission des métaux apportent des renseignements intéressants sur les rassemblements de défauts sous forme de "points noirs" ou de boucles de dislocations, et sur les interactions éventuelles des amas de défauts avec les dislocations, les joints de grains et la surface.

Pour les défauts ponctuels créés par irradiation, la microscopie électronique permet, dans les cas les plus favorables, de déterminer la nature des boucles de défauts qui se forment éventuellement au cours du recuit. Elle permet de dénombrer, de façon approchée, le nombre de défauts entrant dans les boucles de dislocations et de déterminer la température d'élimination des boucles et des "points noirs". Elle met en évidence d'autre part des phénomènes d'ancrage des dislocations.

Dans le cas des défauts ponctuels d'écrouissage, l'observation des amas ou boucles de défauts est rendue difficile par la présence du réseau très dense de dislocations produites par l'écrouissage. Toutefois, l'utilisation de la microscopie électronique est un complément d'étude intéressant pour d'autres techniques expérimentales telles que le frottement intérieur et la résistivité électrique.

L'appareil utilisé pour ces observations est un microscope SIEMENS fonctionnant en transmission sous une tension d'accélération de 100 kV.

CHAPITRE III

BERYLLIUM

RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSIONS.

SECTION III-A - BERYLLIUM - DEFAUTS PONCTUELS CREES PAR IRRADIATION.

III-A-1 - RESULTATS EXPERIMENTAUX

1 - Irradiation par les neutrons.

1-1 - Variation de la résistivité électrique et de l'énergie emmagasinée en fonction du flux intégré.

Sur le tableau VI, nous avons porté, pour différents flux intégrés de neutrons, les augmentations de la résistivité électrique $\Delta\rho$ mesurées après irradiation à 4 °K et à 77 °K. Le tableau VII donne, en fonction du flux intégré de neutrons, l'énergie libérée, E_t , au cours du recuit d'échantillons irradiés à 77 °K.

Sur la figure 15 on observe que $\Delta\rho$ et E_t , dans le cas des irradiations à 77 °K, augmentent avec le flux de façon non linéaire et tendent vers une saturation. A 4° K, l'augmentation de résistivité électrique est environ 4 fois plus importante qu'à 77 °K, pour des doses d'irradiation inférieures à 1.10^{18} n/cm². La variation de $\Delta\rho$ en fonction du flux n'est pas linéaire même à 4 °K.

T_{irrad} (°K)	Piles	Flux neutrons/cm ² (E > 1 MeV)	Flux neutrons/cm ² (E > 0,1 MeV)	$\Delta\rho$ (μncm)
77 °K	Pile MELUSINE	$0,8 \cdot 10^{17}$		0,077
		$0,8 \cdot 10^{17}$		0,08
		$0,46 \cdot 10^{18}$		0,25
		$0,46 \cdot 10^{18}$		0,27
		$0,6 \cdot 10^{18}$		0,34
		$0,6 \cdot 10^{18}$		0,345
		$1,4 \cdot 10^{18}$		0,67
		$2,4 \cdot 10^{18}$		1,03
		$3,0 \cdot 10^{18}$		1,22
	Pile SILOE	$1,6 \cdot 10^{18}$		0,81
		$2,0 \cdot 10^{18}$		0,835
		$2,5 \cdot 10^{18}$		1,36
		$8,2 \cdot 10^{18}$		2,6
		$1,2 \cdot 10^{19}$		3,86
		$1,2 \cdot 10^{19}$		4,14
4 °K	MUNICH	(*)		
		$\approx 3,4 \cdot 10^{16}$	$5 \cdot 10^{16}$	0,1
		$\approx 8,2 \cdot 10^{17}$	$1,2 \cdot 10^{18}$	2,1

TABLEAU VI - Augmentation de la résistivité électrique d'échantillons de béryllium irradié à 4 °K et à 77 °K par des neutrons.

(*) Pour avoir le rapport de transformation des flux de neutrons d'énergie > 0,1 MeV en neutrons d'énergie > 1 MeV, nous avons pris deux échantillons irradiés à 4 °K (E > 0,1 MeV) et à 77 °K (E > 1 MeV) ayant au cours de la restauration un même excès de résistivité résiduel à 90 °K. Le rapport de transformation est donné par le rapport des flux.

T_{irrad} (° K)	Piles	Flux neutrons/cm ² (E > 1 MeV)	E_t (m cal/g).
77 °K	Pile MELUSINE	$6,7.10^{17}$	1 900
		$6,7.10^{17}$	2 380
		$1,25.10^{18}$	2 015
		$3,8.10^{18}$	3 460
		$3,8.10^{18}$	3 860
	Pile SILOE	$8,8.10^{17}$	770
		$5,3.10^{18}$	3 945
		$5,3.10^{18}$	4 095
		$1,12.10^{19}$	7 500
		$1,12.10^{19}$	

TABLEAU VII - Energie emmagasinée par des échantillons de béryllium irradié par des neutrons à 77 °K.

1-2 - Etude de la restauration.

Les figures 16 et 17 représentent des courbes de restauration de la résistivité électrique depuis 4 °K pour deux irradiations ($5,0.10^{16}$ et $1,2.10^{18}$ neutrons/cm² - E > 0,1 MeV).

On constate qu'aucun recuit ne se produit au-dessous de 15 °K. Au-dessus de cette température, la restauration s'effectue de façon continue jusqu'à la température ambiante. Dans le cas de l'irradiation la plus faible effectuée à 4 °K ($\phi = 5.10^{16}$ n/cm² - E > 0,1 MeV), la restauration est achevée à 98 % après recuit à 300 °K. Elle l'est à 99,5 % après recuit à 330 °K.

Les courbes de restauration mettent en évidence un spectre de restauration complexe où, par analogie avec la restauration de l'aluminium irradié, on peut distinguer trois stades: stade I (15-70 °K), stade II (70-220 °K), stade III (220-350 °K). Ces trois stades représentent respectivement 57 %, 30 %, 13 % de la restauration pour la plus faible dose ($\phi = 5.10^{16}$ n/cm² - E > 0,1 MeV).

Le stade I de la restauration se compose de 4 sous-stades très bien séparés. Pour la plus faible dose, les températures correspondant aux maxima sont respectivement 29 °K, 41 °K, 49 °K, 57 °K. Pour l'irradiation la plus importante effectuée à 4 °K ($\phi = 1,2.10^{18}$ n/cm² - E > 0,1 MeV), le nombre de sous-stades est réduit à trois sans doute en raison de l'interférence des deux sous-stades situés à plus basse température.

La présence de cette sous-structure fine dans le stade I est confirmée par le spectre d'énergie libérée depuis 35 °K après irradiation dans un flux intégré de $1,4.10^{17}$ n.rap/cm²

(fig. 18). Le premier des 4 sous-stades observés après irradiation à 4 °K n'apparaît pas dans ce cas, les défauts ponctuels correspondants s'éliminant au cours de l'irradiation à 27 °K.

La restauration dans le stade II (70-220 °K) s'effectue principalement dans deux sous-stades situés à 90 °K (II_A) et 125 °K (II_B). Entre 125 et 220 °K, la restauration s'effectue de façon régulière (II_C). Le stade III (220-350 °K) est constitué par une zone de restauration relativement étalée en température.

L'étude de la restauration dans ces deux derniers stades (II et III) a été étendue à une plus grande gamme de flux intégrés (jusqu'à $1,2 \cdot 10^{19}$ n. rap/cm²) par des irradiations à 77 °K. Sur les figures 19 et 20 sont représentées les courbes de restauration de la résistivité et les spectres d'énergie libérée pour différents flux. Les résultats obtenus par les deux techniques sont en tous points comparables, si ce n'est le décalage systématique en températures dû, comme nous l'avons vu, à la différence des modes de réchauffage.

La figure 20 met en évidence la saturation du sous-stade II_B lorsque la dose de l'irradiation augmente. On peut observer également sur les figures 19 et 20 que le sous-stade II_B ne varie pas en température lorsque la dose de l'irradiation augmente. L'évolution en fonction du flux intégré de neutrons, de la température et de l'importance de II_A n'est pas significative étant donné le léger réchauffage des échantillons pendant l'irradiation. Dans le cas des irradiations à 4 °K, on peut constater sur la figure 17 que le sous-stade II_A semble complexe. On constate également sur cette figure que lorsque le flux augmente, l'évolution est complexe.

Lorsque la dose de l'irradiation augmente, le stade III de la restauration devient très important et sa sous-structure devient moins importante. La température du maximum de ce stade se déplace vers les basses températures (cf. fig. 19 et 20).

Le tableau VIII donne pour deux valeurs du flux l'énergie libérée E au cours de II_B , II_C et III, les variations correspondantes de la résistivité électrique $\Delta\rho$ et les valeurs du rapport $E/\Delta\rho$. On remarque que les valeurs de ce rapport déterminées pour les stades II et III de la restauration sont peu différentes et varient peu avec le flux intégré de neutrons.

1-3 - Cinétiques de restauration et énergies d'activation.

Par mesure de la résistivité et en effectuant des recuits isothermes, nous avons cherché à déterminer la cinétique de restauration dans chaque stade situé au-dessus de 77 °K. Aucune cinétique simple, en particulier du 1er ou du 2ème ordre, n'a été observée. L'ordre apparent ϕ des cinétiques dans les stades II et III est compris entre 2 et 3 (fig. 21). L'ordre apparent à la fin du stade III est $\phi = 3$.

Au cours des expériences d'irradiation à 4 °K effectuées dans le réacteur de Munich-Garching, nous n'avons pas déterminé les énergies d'activation dans le stade I de la restauration. Par contre, dans le cas des irradiations à 77 °K, nous avons mesuré les énergies d'activation dans les stades II et III en utilisant la méthode des tangentes. Dans le stade II elle croît de 0,4 à 0,7 eV avec la température. Elle est d'environ 0,8 eV dans le stade III.

Ces déterminations ne donnent que des valeurs apparentes étant donné que les stades de restauration ne sont pas bien différenciés et que, comme nous le verrons dans la discussion, les mécanismes de la restauration ne sont pas simples.

1-4 - Observations au microscope électronique et mesures de frottement intérieur.

Des observations au microscope électronique ont été effectuées à la température ambiante sur des échantillons ayant été irradiés à 77 °K dans un flux intégré de neutrons rapides, $\phi = 2 \cdot 10^{18}$ n.rap/cm². On observe dans ces conditions quelques "points noirs" et des boucles de petites dimensions. L'analyse des boucles montre qu'elles sont constituées d'interstitiels ou de lacunes, en nombre sensiblement égal pour chaque type. De toute façon ces défauts sont toujours très rares et non uniformément répartis. Il semblerait donc qu'il ne se forme que peu d'amas au cours de la restauration à moins que ceux-ci ne soient trop petits pour être visibles au microscope électronique (pouvoir de résolution ~ 15 Å). Cette seconde hypothèse semble en accord avec les mesures de frottement intérieur.

Nous avons mesuré à la température ambiante le frottement intérieur d'une lame de béryllium irradiée à 77 °K et recuite à 20 °C. Dans ces conditions, le frottement intérieur est faible et il varie peu avec l'amplitude des oscillations, contrairement à ce que l'on observe avant irradiation [35] ou après recuit à 575 °C de la lame irradiée (fig. 22).

On interprète ces résultats par un ancrage des dislocations par les amas présents dans le béryllium irradié à 77 °K et recuit à 20 °C. Au contraire, après recuit à 575 °C, les amas ont été éliminés et le frottement intérieur dû aux dislocations augmente. Il semble ainsi établi que des amas invisibles au microscope électronique subsistent à 20 °C dans le béryllium irradié. Il convient également de rappeler que 98 % seulement de l'excès de résistivité initial sont restaurés à 300 °K dans le cas d'une faible irradiation à 4 °K.

2 - Irradiation par les électrons.

Des irradiations ont été faites à 20°K avec des électrons d'énergies 2, 2,5 et 3 MeV.

La résistivité électrique du béryllium mesurée à la température de l'hydrogène liquide au cours de l'irradiation augmente de façon sensiblement linéaire avec le flux (fig. 23). Sur cette figure on voit que la pente de la droite correspondant à l'irradiation par des électrons de 3 MeV a une valeur intermédiaire entre celles des droites relatives aux irradiations par des électrons de 2,5 MeV. Cela est dû sans doute à des variations entre les différentes irradiations de la distance de l'échantillon à la fenêtre du cryostat. Lorsque cette distance varie il en résulte une diffusion plus ou moins grande du faisceau d'électrons par l'hydrogène liquide, ce qui revient à faire varier le flux réel d'électrons reçus par l'échantillon. Par ailleurs, la dosimétrie de ces flux est assez imprécise.

Dans le cas du béryllium irradié à 20 °K par les électrons de 2,5 MeV, nous avons pu suivre, entre 20 et 77 °K, la restauration des défauts ponctuels en mesurant, au cours du réchauffage de l'échantillon, sa résistance en fonction de la température (fig. 24). La technique utilisée est décrite au chapitre II - Section II-C-1. Avant l'irradiation les valeurs de la résistance à 20 °K et à 77 °K étaient respectivement : $R_{20\text{ °K}} = 6,66.10^{-5} \Omega$, $R_{77\text{ °K}} = 9,94.10^{-5} \Omega$. Après irradiation à 20 °K ($\phi = 9.10^{17} \text{ e}^-/\text{cm}^2$), sa résistance à 20 °K est égale à $13,9.10^{-5} \Omega$. Au cours du réchauffage naturel de l'échantillon (60°/heure environ), la résistance de l'échantillon décroît dans le domaine de température 20-70 °K. Cette diminution de la résistance est due à la restauration des défauts ponctuels, la résistivité idéale du béryllium variant peu dans ce domaine de température. La diminution de la résistance s'effectue en 4 sous-stades : de 26 à 36 °K, de 36 à 46 °K, de 46 à 57 °K, de 57 à 68 °K. Cette sous-structure est tout à fait comparable à celle que nous avons observée après de faibles irradiations par les neutrons à 4 °K (fig. 16) et à 27 °K (fig. 18). Dans ce dernier cas, nous avons vu que le sous-stade situé aux plus basses températures n'apparaissait pas car les défauts ponctuels correspondants s'éliminaient sans doute au cours de l'irradiation à 27 °K.

Au-delà de 70 °K, l'accroissement de la résistivité idéale du béryllium devient prépondérant devant la diminution de résistivité résiduelle due au recuit des défauts. La résistance de l'échantillon augmente très rapidement (fig. 24) et il n'est plus possible de suivre la restauration des défauts ponctuels. A 77 °K la résistance de l'échantillon est égale à $12,8.10^{-5} \Omega$. On calcule aisément que la restauration s'est effectuée à 60 % dans le domaine de température 20-77 °K.

Pour l'étude de la restauration au-dessus de 77 °K, nous avons employé une technique décrite au chapitre II. Après réchauffage brutal des échantillons à 77 °K par immersion dans l'azote liquide, on mesure que 66 % de l'excès initial de résistivité mesuré à 20 °K sont restaurés. Ce pourcentage est très voisin de celui (60 %) mesuré après irradiation par les neutrons dans le cas d'une faible dose. De 77 °K à 300 °K, la restauration se fait de façon continue (fig. 25). La résistivité initiale est complètement restaurée à la température ambiante. Sur la figure 25 est également reportée la courbe de restauration d'un échantillon faiblement irradié à 4 °K par des neutrons. La figure 25 met en évidence la grande similitude des spectres de restauration pour les deux types d'irradiation. Les deux courbes dérivées montrent un sous-stade II_A particulièrement important. Cela confirme que, dans le cas des irradiations par les neutrons à 77 °K, le sous-stade II_A n'apparaît que partiellement au cours de la restauration en raison d'une légère élévation de température des échantillons pendant l'irradiation.

La cinétique de restauration dans le stade III déterminée par résistivité électrique est d'un ordre apparent égal à 3. L'énergie d'activation, obtenue par la méthode des tangentes avec une précision médiocre étant donné la faible augmentation de résistivité initiale, est d'environ 0,45 eV dans le stade II et de 0,7 eV dans le stade III.

Pour un échantillon irradié à 20 °K par des électrons, la mesure de l'énergie libérée entre 30 et 77 °K (fig. 26), confirme la présence des 4 sous-stades observés par résistivité électrique. Les domaines de température respectifs sont dans ce cas : 30 à 37 °K, 37 à 48 °K, 48 à 60 °K, 60 à 75 °K. Sur la figure 26 nous avons également reporté le spectre d'énergie libérée obtenu dans le cas d'un échantillon irradié par les neutrons à 27 °K. On voit que les pics d'énergie sont situés aux mêmes températures. Pour l'échantillon irradié par les neutrons, le premier stade est absent en raison de la température relativement élevée de l'irradiation (27 °K). Dans le cas du béryllium irradié par des électrons, l'énergie libérée par degré au-dessus de 77 °K est trop faible pour être mesurée avec suffisamment de précision.

Nous avons déterminé la valeur du rapport $E/\Delta\rho$ pour le stade I de la restauration du béryllium irradié par des électrons. Le tableau IX donne l'énergie libérée et la variation de résistivité obtenues pour deux irradiations sensiblement équivalentes. Pour un même flux on détermine $E/\Delta\rho = 2,88 \text{ cal/g}/\mu\text{ncm}$. Cette valeur est voisine de celles déterminées pour les stades II et III, dans le cas des irradiations par les neutrons.

Technique	Flux d'e ⁻ /cm ²	Energie des électrons	(E) 75°K 20°K (cal/g)	(Δρ) 75°K 20°K (μΩ/cm)	E/Δρ (cal/g/μncm)
Energie libérée	1,2 . 10 ¹⁸	3 MeV	0,154		))) 2,88))
Résistivité	0,9 . 10 ¹⁸	3 MeV		0,04	

TABLEAU IX.

III-A-2 - DISCUSSION DES RESULTATS.

1 - Etude de la création des défauts dans le béryllium irradié.

1-1 - Estimation à partir des mesures de résistivité électrique des concentrations de défauts créés par les neutrons.

Pour une irradiation effectuée à 4 °K dans un flux intégré $\phi = 5.10^{16} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0,1 \text{ MeV}$), nous avons mesuré une augmentation de résistivité

$$\Delta\rho = 0,1 \mu\text{ncm}.$$

En appliquant la règle de LACASSON et WALKER (cf. Chapitre II - Section II-C) , on peut estimer la concentration correspondante de paires de Frenkel. On détermine ainsi :

$$c_{pF} = 3.10^{-4}$$

On peut calculer à partir de la concentration le nombre moyen, N_{pF} , de paires de Frenkel créées par un neutron. On a (cf. Annexe 1) :

$$N_{pF}/n/cm^2 = \frac{c_{pF} \cdot N}{\phi}$$

avec N : nombre d'atomes par cm^3 .

On obtient :

$$N_{pF}/n/cm^2 = 728.$$

Pour une autre irradiation effectuée à 4 °K dans un flux intégré $\phi = 1,2.10^{18} n/cm^2$ ($E > 0,1$ MeV), nous avons mesuré une augmentation de résistivité

$$\Delta\rho = 2,1 \mu ncm.$$

On détermine pour cette expérience une valeur peu différente du nombre de paires de Frenkel par neutron, soit :

$$N_{pF}/n/cm^2 = 636.$$

Nous comparons au paragraphe 1-4 ces estimations avec d'autres valeurs déterminées expérimentalement par des mesures d'énergie emmagasinée ou théoriquement en appliquant le modèle des sphères dures.

1-2 - Estimation à partir des mesures d'énergie emmagasinée des concentrations de défauts créés par les neutrons.

La plupart des mesures d'énergie ont été effectuées après irradiation à 77 °K. Pour connaître l'énergie emmagasinée par irradiation à 4 °K, nous avons admis que le rapport des énergies emmagasinées en cours d'irradiation à 4 °K et à 77 °K était égal au rapport des augmentations de résistivité électrique mesurées dans les mêmes conditions.

$$\frac{\int_{77}^{350 \text{ °K}} \left(\frac{dE}{dT}\right) dT}{\int_{4 \text{ °K}}^{350 \text{ °K}} \left(\frac{dE}{dT}\right) dT} \neq \frac{\Delta\rho_{77 \text{ °K}}}{\Delta\rho_{4 \text{ °K}}} \approx 0,25 \text{ (cf. III-A-1)}$$

On peut estimer, d'après la figure 15, l'énergie emmagasinée au cours d'une irradiation à 77 °K dans un flux intégré de neutrons $\Phi = 0,5 \cdot 10^{18}$ n./cm² (E > 1 MeV).

$$\int_{77 \text{ °K}}^{350 \text{ °K}} \left(\frac{dE}{dT} \right) dT = 1,2 \text{ cal/g}$$

On déduit :

$$\int_{4 \text{ °K}}^{350 \text{ °K}} \left(\frac{dE}{dT} \right) dT = 4,8 \text{ cal/g}$$

Si on admet pour valeur de l'énergie de formation d'une paire de Frenkel $(E_f)_{pF} = 5 \text{ eV}$, on calcule une concentration de paires

$$c_{pF} = 3,9 \cdot 10^{-4}$$

Dans ce cas le nombre moyen de paires de Frenkel créées par un neutron est égal à :

$$N_{pF}/n/\text{cm}^2 = 94.$$

1-3 - Détermination théorique des concentrations de défauts créés par les neutrons.

Nous avons appliqué au cas du béryllium les calculs du modèle des sphères dures pour la prévision des concentrations de défauts ponctuels (cf. Annexe 1).

Pour une irradiation théorique dans un flux intégré $\Phi = 0,5 \cdot 10^{18}$ n./cm² (énergie des neutrons supérieure à 0,1 MeV ou supérieure à 1 MeV), on calcule

$$(c_{pF})_{th} = 3,05 \cdot 10^{-4}$$

Le nombre correspondant de paires de Frenkel créées par un neutron est :

$$N_{pF}/n/\text{cm}^2 = 73.$$

Les valeurs de c_{pF} et de $N_{pF}/n/\text{cm}^2$ calculées ainsi sont identiques pour des neutrons d'énergie 0,1 MeV ou 1 MeV en raison du ralentissement des primaires par ionisation.

1-4 - Comparaison des différentes valeurs de $N_{pF}/n/\text{cm}^2$ déterminées ou calculées dans le cas des irradiations par les neutrons.

a - Les valeurs de $N_{pF}/n/\text{cm}^2$ estimées à partir des mesures de résistivité sont de 8 à 10 fois plus élevées que celles correspondant aux deux autres types de détermination. On

peut annuler cette différence en supposant que la règle de LUCASSON et WALKER n'est pas valable pour le béryllium, et en attribuant aux paires de Frenkel une résistivité de l'ordre de 30 $\mu\Omega/\text{cm}/\% \text{at}$. Cette valeur est très supérieure à la valeur théorique déduite des calculs de VAN TORNE [27] : si on fait la somme des contributions théoriques à la résistivité d'une lacune et d'un interstitiel en position octaédrique calculées par cet auteur, on détermine une résistivité des paires de Frenkel égale à 0,58 $\mu\Omega/\text{cm}/\% \text{at}$. La valeur calculée avec un interstitiel en position tétraédrique est peu différente.

D'autres résultats expérimentaux conduisent, pour la résistivité des paires de Frenkel, à une valeur de l'ordre de 30 $\mu\Omega/\text{cm}/\% \text{at}$.

(1) - Le tableau IX donne pour deux irradiations par des électrons l'énergie libérée et la variation de résistivité dans le stade I de la restauration. A égalité de flux, la valeur du rapport $E/\Delta\rho$ que nous avons déterminée est égale à 2,88 cal/g/ $\mu\Omega\text{cm}$.

Si on admet que dans le stade I la restauration s'effectue essentiellement par recombinaison de paires de Frenkel, ce qui est vraisemblable, et si on prend pour valeur de l'énergie de formation d'une paire $(E_f)_{\text{pF}} = 5 \text{ eV}$, on peut calculer le nombre de paires de Frenkel correspondant à une énergie de 0,154 cal/g. La variation de résistivité obtenue pour un même flux permet de déterminer une contribution à la résistivité des paires de Frenkel. La valeur déterminée ainsi est égale à :

$$\Delta\rho_{\text{pF}}/\% \text{at} = 43 \mu\Omega\text{cm}.$$

(2) - Nous avons observé pour une irradiation à 4 °K une augmentation non linéaire de la résistivité en fonction du flux de neutrons. La restauration n'intervenant qu'au-dessus de 15 °K, cet effet de saturation est essentiellement dû à une recombinaison athermique des défauts qui intervient déjà pour des domaines relativement faibles. Cet effet a été observé dans des métaux de structures CFC [36]. On l'attribue généralement à la recombinaison de paires de Frenkel provenant du recouvrement partiel des volumes à forte densité de défauts créés par les primaires. On peut, dans ce cas, déterminer le volume de recombinaison des paires de Frenkel, en cherchant à vérifier la loi linéaire :

$$\frac{d\Delta\rho}{dt} = -P \Delta\rho + Q \quad (P \text{ et } Q : \text{constantes}).$$

Celle-ci a été mise en évidence pour de nombreux métaux [37], [38]. Nous l'avons vérifiée dans le cas du béryllium (fig. 27). Par extrapolation de la droite, on déduit $\Delta\rho_\infty$, augmentation de résistivité correspondant à la saturation complète. Dans le cas du béryllium, nous avons déterminé $\Delta\rho_\infty \approx 11,6 \mu\Omega\text{cm}$. En supposant que la règle empirique de LUCASSON et WALKER soit vérifiée ($\Delta\rho_{\text{pF}}/\% \text{at} \approx \rho_{20^\circ\text{C}}$) on estime la concentration limite en paire de Frenkel $(c_{\text{pF}})_\infty \approx 3,5 \%$. A partir de cette valeur on peut calculer le volume de recombinaison des paires de Frenkel. Celui-ci est égal à :

$$V_r = \frac{1}{2 (c_{\text{pF}})_\infty} = 14,3 \text{ vol. atomiques}.$$

Le volume de recombinaison d'une partie de Frenkel que l'on détermine ainsi est inférieur d'un ordre de grandeur aux valeurs généralement admises dans les métaux CFC. Un bon ordre de grandeur est rétabli si on adopte pour résistivité des paires de Frenkel

$$\Delta \rho_{\text{pF/at \%}} \approx 30 \mu\Omega\text{cm}.$$

Nos expériences montrent donc que dans le cas du béryllium il est vraisemblable que la résistivité des paires de Frenkel est très importante, de l'ordre de $30 \mu\Omega\text{cm}/\% \text{ at.}$

b - L'estimation obtenue à partir des mesures d'énergie emmagasinée est supérieure à la valeur calculée théoriquement.

Cet écart peut s'expliquer par le fait que nous comparons le résultat d'une irradiation réelle dans un flux de neutrons de fission et le résultat d'un calcul effectué en considérant un flux de neutrons de même énergie. Or la dosimétrie d'irradiation ne prend en considération que les neutrons d'énergie supérieure à une certaine valeur (0,1 MeV à Munich, 1 MeV à Grenoble).

Nous avons cherché à évaluer la part des neutrons intermédiaires ($0,5 \text{ eV} < E < 10^6 \text{ eV}$) dans la création des défauts ponctuels. Des mesures effectuées dans la pile piscine Mélusine ont montré [39] que :

$$\frac{\phi (0,5 \text{ à } 10^4 \text{ eV})}{\phi (> 10^6 \text{ eV})} \neq \frac{\phi (10^4 \text{ à } 10^6 \text{ eV})}{\phi (> 10^6 \text{ eV})} \neq 1$$

et que la répartition spectrale des neutrons entre 0,5 et 10^4 eV est inversement proportionnelle à leur énergie. Par un calcul simple (cf. Annexe 2), nous avons montré que la concentration de défauts produits par les neutrons d'énergie comprise entre 0,5 et 10^4 eV représente moins de 4 % de celle due aux neutrons rapides d'énergie supérieure à 1 MeV. On peut donc, en première approximation, négliger les effets des neutrons intermédiaires dont l'énergie est comprise entre 0,5 eV et 10^4 eV .

En raison du ralentissement des atomes primaires par ionisation, ceux-ci ne créent des défauts que lorsque leur énergie est inférieure à l'énergie critique d'ionisation $E_c \neq 9 \text{ keV}$. On calcule facilement que l'énergie des neutrons créant des primaires d'énergie moyenne 9 keV est 50 keV. En conséquence, les neutrons dont l'énergie est comprise entre 50 keV et 1 MeV sont aussi efficaces pour la production des défauts que les neutrons de 1 MeV. Or, il apparaît que le flux de neutrons d'énergie comprise entre 10^4 et 10^6 eV est sensiblement égal au flux de neutrons rapides ($E > 1 \text{ MeV}$). Il faut en outre remarquer que l'efficacité de ces neutrons intermédiaires est augmentée par le fait que la section efficace de déplacement augmente de 3 à 6 barns lorsque l'énergie des neutrons décroît de 1 MeV à 10 keV [40].

En négligeant en première approximation les neutrons d'énergie comprise entre 10 et 50 keV, on peut donc écrire :

$$\phi (50 \text{ keV à } 1 \text{ MeV}) \neq \phi (E > 1 \text{ MeV})$$

ce qui montre que la concentration de défauts calculée théoriquement pour un flux ϕ de neutrons de 1 MeV, doit être comparée à la concentration de défauts déterminée expérimentalement dans

un flux $\phi/2$ si la dosimétrie est faite en considérant uniquement les neutrons rapides ($E > 1$ MeV). C'est le cas des mesures d'énergie emmagasinée. De cette façon, la valeur de $N_{pF}/n/cm^2$ que nous avons déterminée expérimentalement, soit

$$N_{pF}/n/cm^2 = 94 \text{ (pour } \phi = 0,5 \cdot 10^{18} \text{ n.rap/cm}^2 - E > 1 \text{ MeV)}$$

est à réduire de moitié, soit $N_{pF}/n/cm^2 = 47$, si on veut la comparer à la valeur correspondante calculée théoriquement et égale à 73. On voit ainsi que l'accord entre les deux valeurs reste bon.

Dans le cas des évaluations à partir des mesures de résistivité, la dosimétrie étant donnée pour les neutrons d'énergie supérieure à 0,1 MeV, aucune correction de ce genre n'est applicable. Le désaccord observé reste total.

1-5 - Déterminations des concentrations de défauts créés par les électrons.

Pour une irradiation dans un flux intégré de $1 \cdot 10^{18}$ électrons/cm² d'énergie $E_0 = 3$ MeV, on calcule à l'aide du modèle théorique des chocs coulombiens (cf. Annexe 3) :

$$(c_{pF})_{\text{théorique}} = 2,7 \cdot 10^{-5}$$

Pour une irradiation à 20 °K dans un flux de $9,2 \cdot 10^{17}$ électrons/cm² de 3 MeV, nous avons mesuré une augmentation de résistivité de 0,082 $\mu\Omega\text{cm}$. En appliquant la règle de LUCAS-SON et WALKER, on déduit pour un flux $\phi = 1 \cdot 10^{18}$ électrons/cm² :

$$(c_{pF})_{\text{résistivité}} = 2,7 \cdot 10^{-4}$$

Nous pouvons obtenir une autre estimation par les mesures d'énergie emmagasinée. Pour une irradiation dans un flux de $1,2 \cdot 10^{18}$ électrons/cm² de 3 MeV, l'énergie libérée entre 20 °K et 77 °K représente 154 m.cal/g. Au-delà de 77 °K, l'énergie libérée par gramme et par degré est trop faible pour être mesurée avec précision. On peut obtenir la valeur de l'énergie totale emmagasinée en se basant sur le fait que la restauration à 77 °K est effectuée à 66 %. On détermine ainsi pour un flux de $1,2 \cdot 10^{18}$ électrons/cm² une énergie totale emmagasinée égale à 234 m.cal/g. En prenant pour valeur de l'énergie de formation d'une paire de Frenkel $(E_f)_{pF} = 5$ eV, on calcule pour un flux $\phi = 1 \cdot 10^{18}$ électrons/cm² une concentration de paires :

$$(c_{pF})_{\text{énergie}} = 1,6 \cdot 10^{-5}$$

Comme dans le cas de l'irradiation neutronique, les estimations effectuées d'après les mesures d'énergie sont en assez bon accord avec les estimations théoriques.

De même, l'estimation effectuée par les mesures de résistivité électrique est supérieure par un facteur 10 environ aux autres déterminations, ce qui confirme l'ordre de grandeur à adopter pour la résistivité des paires de Frenkel dans le béryllium

$$\Delta\rho_{\text{pF/at \%}} \sim 30 \mu\text{ncm.}$$

2 - Etude de la restauration des défauts.

La discussion est effectuée dans le cadre des modèles généralement admis pour la restauration des défauts ponctuels créés par irradiation dans les métaux (cf. Annexe 5).

Il convient tout d'abord de rappeler quelques points importants concernant la restauration des défauts dans le cas de nos expériences :

(1) - La teneur en impuretés des échantillons est de l'ordre de 0,10 %. A de telles teneurs, les impuretés doivent intervenir fortement dans la diffusion des défauts ponctuels et dans leurs interactions ; ceci entraîne des modifications sensibles du spectre de restauration, des cinétiques de restauration et des énergies d'activation.

(2) - L'effet sur la résistivité électrique des faibles concentrations d'hélium introduites par les réactions nucléaires est négligeable dans nos conditions expérimentales.

(3) - L'irradiation par des neutrons ne semble pas former de zones lacunaires telles que l'on en observe, par exemple, dans les métaux nobles [41], [42], ce qui est en accord avec le fait qu'à la température ambiante la restauration est pratiquement terminée.

Stade I.

Dans le stade I (au-dessous de 77 °K) la restauration est très comparable qu'il s'agisse d'irradiation par des neutrons ou d'irradiation par les électrons. Ces résultats semblent indiquer que les processus de guérison correspondants sont les mêmes. Cela implique, en outre, que les irradiations par les neutrons ne créent pas de zones lacunaires dans le béryllium.

D'une façon générale, la restauration des métaux irradiés dans la région des basses températures ($T < 100$ °K), présente un sous-stade important, précédé ou suivi de plusieurs petits pics [31], [43]. La restauration du béryllium au-dessous de 77 °K semble s'effectuer selon ce schéma.

Le début de la restauration est généralement le fait de la recombinaison des paires de Frenkel proches. Il est donc vraisemblable que le premier et large sous-stade observé lui est associé. Celui-ci est située entre 20-35 °K avec un maximum à 29 °K (fig. 16). Lorsque la dose de l'irradiation augmente par un facteur 20 environ (fig. 17), les deux sous-stades situés aux plus basses températures interfèrent et donnent un sous-stade unique dont le maximum est à 29 °K également. Il est possible que cette interférence résulte d'un glissement vers les basses températures du deuxième sous-stade. Une telle évolution avec l'augmentation de la dose est caractéristique d'une cinétique d'ordre $\phi \neq 1$ qui peut être attribuée à un mécanisme de diffusion libre d'un type de défaut. Ainsi dans le cas du béryllium, la migration d'un défaut de type interstitiel pourrait intervenir dans le sous-stade situé entre 35 et 45 °K.

Pour de nombreux métaux et en particulier pour le cuivre (sous-stade I_E) et l'aluminium, on a montré que le premier processus de migration libre intervenait aussitôt après le grand sous-stade I_D [43] ... [47]. La migration libre des interstitiels doit conduire essentiellement à leur annihilation sur des lacunes immobiles, ou à leur agglomération ou encore à leur piégeage sur des atomes d'impuretés. Toutefois, dans le cas du béryllium, la possibilité de migration pour les interstitiels dans le domaine de températures 35 - 45 °K ne repose pas sur des faits expérimentaux bien établis. De plus, si on l'admet, il est difficile d'expliquer les sous-stades apparaissant au-dessus de 45 °K et situés entre 45-54 °K, 54-70 °K. Leur stabilité en température plaide en faveur d'une interprétation par recombinaison de paires "moins proches", ce qui exclut la possibilité d'une migration d'interstitiels libres au-dessous de 45 °K. Pour ces raisons, nous envisageons pour les interstitiels la possibilité de migrer à plus haute température. Dans le cas, la totalité du stade I serait à attribuer à la recombinaison de paires de Frenkel plus ou moins proches.

Stade II.

Le stade II (70 - 220 °K) comporte essentiellement deux sous-stades II_A (70 - 110 °K) et II_B (110 - 130 °K) suivis d'une zone de restauration monotone II_C (fig. 17, 19 et 20). Les deux sous-stades II_A et II_B sont relativement importants pour de faibles irradiations.

II_B , dans le cas des irradiations à 77 °K, se sature et reste inchangé en température lorsque le flux de neutrons augmente (fig. 20).

II_A présente une sous-structure dont l'évolution est soit complexe pour les doses relativement faibles ($\phi \sim 1.10^{18}$ n/cm² d'énergie supérieure à 0,1 MeV - fig. 17), soit mal connue pour les fortes doses (recuit thermique partiel pendant les irradiations à 77 °K (fig. 19 et 20). Dans le cas des irradiations par les électrons, le sous-stade II_A est relativement important (fig. 25). Malgré les nombreux doutes expérimentaux quant à l'évolution du sous-stade II_A en fonction de la dose, on peut cependant envisager la possibilité pour l'interstitiel libre de migrer dans ce domaine de température (70 - 95 °K).

Le stade II au-delà de 110 °K serait alors dû à des interactions entre les interstitiels et les atomes étrangers, dépiégeage thermique des interstitiels par exemple. Ceci est fortement suggéré par les résultats obtenus sur l'aluminium, métal dont la restauration présente certaines analogies avec celle du béryllium [48]. Dans ce métal, plusieurs auteurs ont observé des effets importants des impuretés sur l'allure du stade II [49] ... [53] attribués à un effet de taille [52]. Au contraire, d'après GARR et SOSIN [53], dans l'aluminium les effets électroniques semblent plus importants que les effets de taille pour expliquer les interactions défauts-impuretés. Le mécanisme de piégeage est capable d'expliquer la saturation du sous-stade II_B observée lorsque le flux de neutrons augmente, mais il est difficile par contre de comprendre sa stabilité en température.

Le fond continu de restauration observé entre 125 °K et 200 °K (II_C) pourrait être en relation avec la forte concentration d'impuretés de natures très diverses.

Certains auteurs admettent, dans le cas des métaux CFC notamment, que la migration de l'interstitiel libre intervient dans le stade III de la restauration des métaux irradiés, donc

à relativement haute température ($\sim 0,15$ à $0,2 T_{\text{fusion}}$). Dans cette hypothèse, on doit considérer que dans le stade II se recuisent des paires moins proches ou des paires proches dont l'interstitiel aurait été piégé par un atome d'impureté. L'importance relativement grande de ce stade dans le cas de l'irradiation par des électrons où l'on crée essentiellement des paires plus ou moins proches, ainsi que la stabilité en température de II_B , sont en accord avec une guérison de ce genre. Par contre, ce modèle ne permet pas de rendre compte simplement de l'existence de plusieurs sous-stades bien définis.

BURGER [31] suggère que dans l'aluminium le stade II pourrait être dû, en partie, à la recombinaison de certaines configurations de paires de Frenkel créées au cours des collisions de grande énergie. On ne peut retenir cette hypothèse pour le béryllium, puisque le stade II est relativement important après irradiation par les électrons.

Stade III.

Le stade III (220 - 320 °K) est peu important dans le cas d'une irradiation par les électrons ou de faibles irradiations par les neutrons à 4 °K (fig. 16). Pour les irradiations par les neutrons à 77 °K, il augmente considérablement avec le flux et se déplace en même temps vers les basses températures. Sa sous-structure est d'autant mieux définie que le flux est plus faible (fig. 19 et 20). Apparemment au moins deux processus de guérison sont responsables de ce stade.

Il est généralement admis que dans les métaux irradiés les défauts lacunaires se recuisent dans le dernier stade observé avant le stade dû à la dissociation des amas de défauts par autodiffusion. Dans le cas du béryllium, l'énergie de migration des lacunes n'a pas été, à notre connaissance, déterminée. Les expériences de trempe entreprises dans le laboratoire du DM-SRMP (CEN-Grenoble) n'ont pas permis d'obtenir des résultats satisfaisants en raison de la teneur en impuretés du matériau utilisé. Cependant on peut en avoir une idée en prenant comme ordre de grandeur la moitié de l'énergie d'autodiffusion [54], soit 0,85 eV, valeur qui est voisine de celle trouvée dans le stade III du béryllium irradié par des neutrons. On peut donc admettre que la migration des monolacunes intervient à la fin du stade III.

Le début du stade III peut être interprété comme étant le fait de la migration libre des bilacunes (modèle lacunaire) ou de celle des interstitiels (modèle interstitiel).

L'interprétation du stade III, en se référant au modèle lacunaire, suppose que la migration des interstitiels libres s'effectue à plus basse température. Nous avons en effet envisagé, au cours de la partie antérieure de la discussion, la possibilité pour l'interstitiel de migrer dans le stade I ou, de façon plus plausible, dans le sous-stade II_A . La disparition des défauts du type lacunaire qui n'ont pas été annihilés au cours de la diffusion des interstitiels s'effectuerait sur des puits fixes et surtout sur les amas d'interstitiels formés pendant l'irradiation ou pendant la migration des interstitiels. On peut expliquer le déplacement vers les basses températures du maximum du stade lorsque le flux de neutrons augmente par l'augmentation du nombre des bilacunes par rapport à celui des monolacunes.

Dans le cadre du modèle interstitiel, nous avons envisagé pour les interstitiels la possibilité de migrer au début du stade III. On admet dans ce cas que interstitiels et lacunes libres ont des énergies de migration très voisines et que la restauration dans le début du stade III

se fait par annihilation mutuelle. Un tel processus de guérison se produit théoriquement avec une cinétique d'ordre 2, ce qui s'accompagne d'un déplacement du maximum du stade vers les basses températures lorsque la concentration de défauts augmente. Ce modèle peut donc rendre compte du décalage en température de ce stade et expliquer la part prépondérante qu'il prend lorsque la concentration en défauts devient importante. Il est de plus en accord avec l'observation selon laquelle le rapport de l'énergie libérée et de la résistivité restaurée varie peu dans les stades I, II et III. En effet, ISEBECK [55] qui a déterminé au cours de la restauration de l'aluminium irradié à 4 °K des valeurs sensiblement constantes de $E/\Delta\rho$ et de $\frac{\Delta L}{L} / \Delta\rho$ (L est la longueur de l'échantillon), en déduit que ce sont les mêmes défauts qui disparaissent au cours des différents stades de la restauration et que ces défauts sont simples. ISEBECK attribue ainsi la restauration dans le stade III à la migration des interstitiels libres qui s'éliminent sur des lacunes immobiles.

Dans le cas du béryllium, il faut remarquer que la migration à la fin du stade III d'une certaine concentration de lacunes nécessite qu'à plus basse température des interstitiels en concentration égale disparaissent sur des puits fixes ou s'associent en amas. On peut penser que les lacunes se recuisant au stade III n'éliminent pas complètement les amas d'interstitiels et qu'elles peuvent au contraire former des amas de lacunes. Nous avons vu que la microscopie électronique ne révélait que très peu d'amas des deux types après recuit à la température ambiante. On peut penser qu'il existe également à cette température des amas dont la taille est inférieure au pouvoir de résolution du microscope. La présence de ces amas pourrait rendre compte de l'ancrage des dislocations, observé par frottement intérieur après recuit à la température ambiante.

Indépendamment du modèle choisi, l'allure semblable de la restauration du béryllium (h.c) et de l'aluminium (c.f.c), tous deux métaux légers, semble significative. Rappelons que dans l'aluminium irradié la restauration s'effectue également en trois stades jusqu'à la température ambiante [49]. Cette analogie nous a conduit à la dénomination des stades I, II et III dans le béryllium.

Le tableau X résume les points essentiels de l'interprétation de la restauration, dans chacun des deux modèles théoriques pris en référence.

SECTION III-B - BERYLLIUM - DEFAUTS PONCTUELS CREEES PAR ECROUISSAGE.

III-B-1 - ETUDE DE LA CREATION DES DEFAUTS PAR DEFORMATION PLASTIQUE.

Sur la figure 28 nous avons reporté les augmentations de résistivité électrique observées au cours de la traction de fils de béryllium ($\phi = 0,5$ mm). On observe que la résistivité augmente de façon sensiblement linéaire avec l'allongement plastique ϵ :

$$\Delta\rho = C \epsilon + D$$

STADES	I	II	III	IV	V
Modèle "lacunaire"	Paires Proches $I_E \rightarrow$ interstitiel libre	Dépiégeage des interstitiels	Bilacunes	Lacunes Dépiégeage des lacunes	Dissociation des amas
Modèle "interstitiel"	Paires Proches	Dépiégeage des paires de Frenkel	Interstitiels	Lacunes Dépiégeage des lacunes	Dissociation des amas
B_e	I ($T < 70^\circ K$) 4 sous-stades	II ($70-220^\circ K$) II_A, II_B , fond continu	III_A III ($T > 220^\circ K$) III_B (fin du stade)		
Modèle "lacunaire"	<u>Paires Proches</u> . Restauration à $15^\circ K$. Sous-stades stables en température sauf $35-45^\circ K$. Stade important après irradiation/ e^- ----- <u>Interstitiel libre : 2 Domaines de températures possibles</u> 1) $35-45^\circ K$: sous-stade se déplace vers les basses températures quand ϕ croît 2) $70-110^\circ K$: stade important pour les faibles irradiations	<u>Dépiégeage interstitiel</u> . Saturation de II_B . Fond continu de 125 à $220^\circ K$ -----	<u>Bilacunes</u> Lacunes (fin de stade) . Valeur énergie d'activation . Dernier stade de restauration . $\phi \neq 1$		
Modèle "interstitiel"	<u>Paires Proches</u> Comme ci-dessus	<u>Dépiégeage des paires</u> Comme ci-dessus . II_B stable en température . Stade II important après irradiation/ e^-	<u>Interstitiels</u> . importance du stade . $\phi \neq 1$. $\frac{\Delta E}{\Delta p}$ varie peu dans I, II, III	<u>Lacunes</u> (fin du stade) Voir ci-dessus	

TABLEAU X - Arguments pour l'interprétation de la restauration du béryllium irradié dans

avec

$$1,2 < C < 1,7$$

D : constante difficile à déterminer compte tenu de l'incertitude sur le début du domaine plastique.

Les allongements plastiques sont déterminés à partir de l'enregistrement de la courbe $\sigma = f(\epsilon)$.

Les valeurs de C sont comparables à celles obtenues dans le cas d'autres métaux et tout particulièrement dans le cas du magnésium (Tableau XI).

Métal	Température de déformation (°K)	$C = \Delta\rho$ (10^{-8} ohm.cm/%)	Référence
Zr	4,2	4,3	[56]
Zr	293	0,27	[57]
Cd	77	2,9	[58]
Ti	293	0,76	[57]
Be	77	$1,2 < C < 1,7$	-
Mg	77	$1,9 < C < 2,1$	Section IV-B

TABLEAU XI.

III-B-2 - ETUDE DE LA RESTAURATION DES DEFAUTS CREES PAR ECROUISSAGE.

1 - Etude par résistivité électrique de la restauration depuis 77 °K.

Dans une expérience préliminaire, nous avons constaté que 60 % de l'augmentation de résistivité après traction à 77 °K étaient restaurés après recuit à la température ambiante.

Dans le cas de fils de béryllium ($\phi = 0,5$ mm) écrouis par compression, nous avons étudié la restauration de la résistivité par des recuits isochrones (20 minutes tous les 20 °K) effectués entre 77 °K et 520 °K (fig. 29). La restauration se fait de façon continue : cependant la courbe dérivée met en évidence au moins deux stades principaux, l'un vers 190 °K, l'autre vers 290 °K, suivis d'une zone de restauration qui se poursuit jusqu'à 500 °K. Sauf dans quelques expériences il n'a pas été possible en général de mener l'étude de la restauration jusqu'au bout, l'échantillon se cassant brusquement au cours du cyclage thermique imposé par la méthode de recuits isochrones. Pour cette raison également, nous n'avons pas effectué de recuits isothermes.

Sur la figure 29 on a également représenté (en trait pointillé) la courbe de restauration obtenue après irradiation par des neutrons à 77 °K pour un excès initial de résistivité sensiblement égal à celui obtenu après écrouissage (courbe en trait plein). Bien que les restaurations soient assez différentes, on peut toutefois penser que les défauts responsables de la restauration dans le domaine de températures 220 - 300 °K sont du même type. En particulier il est

CHAPITRE IV

MAGNESIUM

RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSIONS.

SECTION IV-A - MAGNESIUM - DEFAUTS PONCTUELS CREES PAR IRRADIATION.

IV-A-1 - RESULTATS EXPERIMENTAUX.

1 - Irradiation par les neutrons.

1-1 - Variation de la résistivité électrique en fonction du flux intégré de neutrons.

Sur la figure 35 nous avons reporté d'une part la variation de la résistivité en fonction du flux de neutrons au cours d'une irradiation à 4 °K, d'autre part les augmentations de résistivité observées pour des échantillons irradiés, à 77 °K. Les augmentations de résistivité correspondant à ces différentes expériences sont rassemblées dans le tableau XII.

On constate qu'il n'y a pas de différence significative pour les deux qualités de Mg irradiées à 4 °K. Par contre, à 77 °K l'augmentation de résistivité est plus faible d'environ 9 % pour le magnésium le plus pur.

Pour les faibles doses on peut voir sur la figure 35 que l'augmentation de résistivité est environ trois fois plus importante à 4 °K qu'à 77 °K. Pour les irradiations à 77 °K, on observe une tendance très marquée à la saturation à partir de flux de l'ordre de $2 \cdot 10^{18}$ n.rap/cm².

défauts de type lacunaire qui se recuient au-dessus de la température ambiante peuvent sans doute jouer le rôle de sources de lacunes pour la montée des dislocations mais il ne peut s'agir là que d'une contribution limitée.

Le réarrangement à basse température d'un réseau de dislocations créées par écrouissage avec diminution de la densité de dislocations a été observé dans d'autres métaux. Dans l'or écroui à la température de l'hélium liquide, OKUDA et TAKAMURA [60] observent une restauration continue de la résistivité électrique de 4,2 jusqu'à 120 °K qu'ils attribuent au réarrangement des dislocations avec diminution de la densité. Dans le chrome écroui, DE MORTON [61] a observé au-dessous de 300 °C, c'est-à-dire en dehors du domaine de recristallisation, une restauration du module de cisaillement et de la résistivité électrique. L'auteur suggère, entre autres explications, que la restauration serait due à un réarrangement du réseau de dislocations avec diminution de leur densité, les défauts ponctuels créés par l'écrouissage contribuant à la montée des dislocations.

- Variation du frottement intérieur avec la température.

Lorsqu'on élève la température au cours du premier chauffage, le frottement augmente jusqu'à 200 °C environ, décroît ensuite jusqu'à 300 °C puis augmente à nouveau (fig. 33). On obtient ainsi une espèce de "pic" irrégulier dont le maximum, mal défini, se situe vers 200 °C. Au voisinage du maximum le frottement intérieur ne dépend pas de l'amplitude des oscillations. Au cours du deuxième chauffage le "pic" n'apparaît pas. Le frottement intérieur reste pratiquement constant jusqu'à 300 °C puis il augmente rapidement comme cela a été observé précédemment dans le béryllium non écroui [35].

Si on effectue, après écrouissage, des recuits isothermes dans le domaine d'apparition du "pic" de frottement intérieur, on observe que le décrétement des oscillations mesuré à la température du recuit diminue au cours du temps (fig. 34). Il en est de même pour la période des oscillations. La variation du décrétement est de la forme :

$$\log \delta = - m \log t + \text{constante}$$

La pente de la droite m est fonction de la température de recuit. Si l'on suppose que m varie suivant une loi d'Arrhénius, on détermine une énergie apparente d'activation de 0,1 - 0,2 eV environ, au voisinage de 140 °C. Cette détermination est toutefois très imprécise car la mise en température de l'échantillon pour le recuit isotherme est relativement longue en raison du mode de chauffage de l'échantillon. Cependant, l'ordre de grandeur de l'énergie d'activation que nous avons déterminé semble montrer que le mécanisme donnant du frottement intérieur n'est pas contrôlé par la dissociation des amas de défauts ponctuels ou par la migration des impuretés. On devrait en effet obtenir dans ce cas une valeur de l'ordre de 1 eV. Ce n'est pas pour autant que l'on puisse proposer un mécanisme précis. Il semble cependant que le frottement intérieur soit lié au mouvement des dislocations "fraîches". En effet, le frottement intérieur est maximum lorsque la vitesse de variation de la période est maximum vers 200 °C, c'est-à-dire lorsque le nombre de dislocations qui se réarrangent ou qui disparaissent est maximum. L'énergie

d'activation que l'on mesure doit alors représenter l'énergie nécessaire pour que les dislocations franchissent les barrières qui bloquent leur déplacement. Il est à remarquer que l'ordre de grandeur des énergies d'activation obtenues correspond à la valeur que l'on peut attendre pour l'énergie de formation d'une paire de crans lors du croisement de deux dislocations.

Ces résultats (augmentation de module, "pic" de frottement intérieur) sont à rapprocher de ceux obtenus par P.M. ROBINSON et P.N. RICHARDS au cours de la recristallisation du fer écroui [62]. Ces auteurs mesurent à 20 °C le frottement intérieur et le module de cisaillement d'échantillons de fer écrouis puis recuits à 650 °C, dans le domaine de recristallisation. Au fur et à mesure que le traitement à 650 °C se prolonge, ils observent que le frottement intérieur augmente, passe par un maximum, puis diminue et que le module augmente pour atteindre une valeur constante. Selon ces auteurs le frottement intérieur serait dû aux vibrations des lignes de dislocations entre leurs points d'ancrage et varierait comme le produit de la densité de dislocations D par la longueur des arcs L entre deux points d'ancrage. Dans le matériau écroui, D est élevé mais L est faible par suite des interactions entre dislocations.

Au cours de la recristallisation D diminue et L augmente. Le second effet l'emportant il en résulte une augmentation du frottement intérieur. La diminution du frottement dans le stade final de la recristallisation serait due à un réancrage des dislocations après réarrangement du réseau plutôt qu'à la diminution de la densité de dislocations.

Notre étude expérimentale des défauts créés par écrouissage dans le béryllium, si elle n'apporte que peu de renseignements sur les défauts ponctuels eux-mêmes, fournit des renseignements intéressants sur les interactions entre les amas de défauts et les dislocations créés par l'écrouissage. Les mesures de module élastique, de frottement intérieur et les observations de microscopie électronique, ont permis de mettre en évidence de façon certaine un réarrangement important du réseau de dislocations qui s'opère entre 100 et 300 °C.

vraisemblable qu'à ces températures s'éliminent des défauts de type lacunaire contribuant fortement à l'augmentation de résistivité initiale. Les défauts ponctuels créés dans le béryllium par irradiation étant restaurés à 300 °K, on peut penser qu'il en est sensiblement de même dans le cas de l'écrouissage. Il faut alors attribuer la restauration observée au-dessus de 300 °K en majeure partie à la disparition des dislocations.

Pour un échantillon ayant subi une déformation maximale de 7 %, il reste à 300 °K un excès de résistivité de $0,036 \cdot 10^{-6}$ ohm.cm. La contribution des dislocations à la résistivité électrique a été déterminée expérimentalement par BREHM et LEHR [57] dans le zirconium ($6,2 \cdot 10^{-18}$ ohm.cm³) et le titane ($14,6 \cdot 10^{-18}$ ohm.cm³). Ces valeurs sont relativement élevées si on les compare à celles admises pour les métaux cubiques à faces centrées ($2 \cdot 10^{-19}$ ohm.cm³ environ pour Cu, Ag, Au, Al). BASINSKI, DUGDALE et HOWIE, à partir d'un modèle théorique ont calculé pour le zirconium une contribution de $8,6 \cdot 10^{-18}$ [59].

A partir du modèle de BASINSKI et al. on calcule pour le béryllium une valeur voisine de $1 \cdot 10^{-18}$ ohm.cm². On détermine ainsi une densité voisine de $3,6 \cdot 10^{10}$ dislocations par cm², valeur raisonnable pour le taux de déformation utilisé ($\epsilon = 7\%$). Il semble cependant difficile d'attribuer la totalité de la restauration observée entre 300 et 500 °K à la seule disparition des dislocations. Comme nous le verrons plus loin, des amas de défauts caractéristiques de l'écrouissage, observés par microscopie électronique à la température ambiante, disparaissent également dans cette gamme de températures. Ceux-ci contribuent certainement pour une part importante à l'excès de résistivité subsistant à 300 °K.

2 - Etude par frottement intérieur et microscopie électronique.

Nous avons effectué des mesures de frottement intérieur entre 20 et 500 °C au moyen d'un pendule de KE sur des fils de béryllium déformés par compression à la température de l'azote liquide. Après écrouissage à 77 °K les échantillons sont sortis de l'azote liquide, mis en place sur le pendule à la température ambiante et les mesures de frottement intérieur commencent aussitôt.

- Etude des variations de module.

Au cours du premier chauffage (vitesse de chauffage : 1 °C/minute) de 20 à 400 °C on observe (fig. 30) que la période des oscillations diminue de façon irréversible entre 100 et 300 °K, ce qui correspond à une augmentation du module de cisaillement G. Celle-ci est de 14 % dans le cas d'un échantillon déformé par compression de 7 %. Au cours d'un deuxième chauffage, après recuit à 400 °C environ, la période des oscillations augmente normalement lorsque la température augmente. Nous avons vu que le module G relie la contrainte et la déformation élastique suivant la relation (cf. Chapitre II - Section II-C) :

$$G = \frac{\sigma}{\epsilon} = \frac{\sigma}{\epsilon_{\text{élastique}} + \epsilon_{\text{dislocation}}}$$

où σ est la contrainte de cisaillement, $\epsilon_{\text{élastique}}$ la déformation élastique, $\epsilon_{\text{dislocation}}$ la défor-

mation réversible des arcs de dislocations. L'augmentation de module correspond à une diminution du terme $\epsilon_{\text{dislocation}}$. Ce phénomène étant irréversible met en jeu les dislocations "fraîches" créées par l'écrouissage.

Nous avons envisagé deux possibilités : soit l'ancrage des dislocations augmente au cours du chauffage ; soit les dislocations se réarrangent en un réseau nouveau, plus stable et leur nombre diminue.

Dans la première hypothèse, l'ancrage serait dû soit à la diffusion de défauts ponctuels produits par l'écrouissage et n'ayant pas été éliminés vers les dislocations fraîches, soit à celle des impuretés. Le fait que la résistivité électrique qui est sensible à la présence de défauts ponctuels soit totalement restaurée à 500 °K montre que ceux-ci ont certainement disparu à cette température et qu'ils ne peuvent plus alors participer à un ancrage. On peut aussi imaginer que lorsqu'on élève la température, la vitesse de diffusion des impuretés augmente et que celles-ci viennent ancrer les dislocations "fraîches". Nous verrons que les observations faites au microscope électronique et l'existence d'un "pic" de frottement intérieur ne permettent pas de retenir cette hypothèse.

Dans la seconde hypothèse, on suppose que les dislocations fraîches se déplacent et qu'elles se réorganisent en un réseau nouveau, leur nombre pouvant diminuer au cours d'un tel processus. Les mesures du frottement intérieur et les observations au microscope électronique ont permis de vérifier ce processus.

- Observations au microscope électronique.

Des lames de béryllium de 0,25 mm d'épaisseur ont été déformées faiblement par compression ($\epsilon \approx 1\%$) à la température de l'azote liquide. Après écrouissage les échantillons subissent un traitement thermique de deux heures à des températures différentes dans la gamme 20° - 250 °C. Les lames sont amincies au-dessous de la température ambiante et observées à la température ordinaire.

Après recuit à 20 °C (fig. 31-a) on observe une forte densité de dislocations formant des enchevêtrements ainsi que de nombreux débris dus à l'écrouissage (dipôles ou boucles de défauts ponctuels sans que l'on puisse les différencier). Après recuit à 55 °C l'aspect a peu changé (fig. 31-b). Au contraire, après recuit à 150 °C (fig. 32-a) on observe un réarrangement important du réseau de dislocations. Les enchevêtrements ont disparu. On observe un début de polygonisation avec formation de parois et une diminution de la densité de dislocations. Les dipôles ou les boucles de défauts ponctuels ont également disparu. Après recuit à 250 °C (fig. 32-b) l'évolution se poursuit dans le même sens, mais le réarrangement le plus important est observé vers 150 °C.

D'après ces résultats, il semble confirmé que les dislocations "fraîches" créées par écrouissage à 77 °K se réarrangent vers 150 °C en un réseau nouveau et que leur nombre diminue. On rend compte ainsi, au moins qualitativement, de l'augmentation de module observée au-dessus de 100 °C et de la restauration de la résistivité électrique au-dessus de la température ambiante. On peut néanmoins être surpris que des dislocations disparaissent dans le béryllium à une température si éloignée du domaine de recristallisation (900 °C environ). Les amas de

T _{irrad}	Mg bisublimé 99,95 %			Mg Zone fondue 99,995 %		
	ϕ (n/cm ²) (E > 0,1 MeV)	ϕ (n/cm ²) (E > 1 MeV)	$\Delta\rho$ ($\mu\Omega\text{cm}$)	ϕ (n/cm ²) (E > 0,1 MeV)	ϕ (n/cm ²) (E > 1 MeV)	$\Delta\rho$ ($\mu\Omega\text{cm}$)
77 °K		2,05.10 ¹⁷	0,102		1,8.10 ¹⁷	0,068
		1,75.10 ¹⁸	0,43		2,07.10 ¹⁷	0,078
		1,82.10 ¹⁸	0,446		4,15.10 ¹⁸	0,532
		2,25.10 ¹⁸	0,47			
		7,8.10 ¹⁸	0,74			
		8,45.10 ¹⁸	0,768			
4 °K	5.10 ¹⁶	$\sim 3.10^{16}(\star)$	0,0387	5.10 ¹⁶	$\sim 3.10^{16}(\star)$	0,0386
	1,2.10 ¹⁸	$\sim 7.10^{17}$	0,650	1,2.10 ¹⁸	$\sim 7.10^{17}$	0,650

TABLEAU XII - Augmentation de résistivité électrique d'échantillons de magnésium irradié à 4 °K et à 77 °K par des neutrons.

(★) L'équivalence entre les flux de neutrons d'énergie > 0,1 MeV et les flux d'énergie > 1 MeV a été établie d'après le critère déjà utilisé dans le cas du béryllium (cf. tableau VI).

1-2 - Etude de la restauration.

Etude de la restauration par des mesures de résistivité électrique.

Par une méthode de recuits isochrones nous avons étudié la restauration de la résistivité électrique depuis 4 °K, pour deux irradiations dans des flux intégrés de neutrons d'énergie supérieure à 0,1 MeV $\phi = 5.10^{16}$ et $\phi = 1,2.10^{18}$ n/cm². La figure 36 représente la restauration de la résistivité électrique depuis 4 °K dans le cas de la plus faible dose, pour les deux qualités de magnésium utilisées.

Nous avons adopté un découpage de la restauration en 5 stades d'inégale importance (4-35 °K), (35-90 °K), (90-170 °K), (170-300 °K), (300-400 °K). Ce découpage sera justifié au cours de la discussion sur l'interprétation de nos résultats.

La restauration de la résistivité électrique dans le magnésium irradié à 4 °K est très différente de celle mise en évidence dans le cas du béryllium. On observe en effet sur la figure 36 une restauration importante entre 4 °K et 6 °K, suivie d'une zone sans restauration entre 6 et 10 °K. La restauration reprend de façon lente et régulière de 10 à 35 °K. Au-dessus de 35 °K le spectre de restauration présente une structure complexe. Dans le stade II (35-90 °K), les deux sous-stades situés entre 35 °K et 60 °K sont particulièrement bien résolus. Le stade III (90-170 °K) est important et résulte de la juxtaposition de deux sous-stades situés dans les

domaines de température 90-140 °K et 140-170 °K. Ce dernier semble dépendre de la concentration en impuretés du métal. Le stade IV (170-300 °K) présente une sous-structure complexe qui dépend fortement de la pureté du métal ; son amplitude est plus importante dans le magnésium le moins pur. Dans le stade V ($T > 300$ °K) la restauration représente moins de 1,5 % de l'augmentation initiale de la résistivité. Il est plus important dans le magnésium le plus pur. Le tableau XIII donne, en pourcentages, les contributions respectives à la restauration des différents stades, pour une faible dose d'irradiation ($\Phi = 5.10^{16}$ n/cm² - ($E > 0,1$ MeV).

Qualité de Mg	$\Delta \rho / \Delta \rho_0$ (%)				
	(4-35 °K) Stade I	(35-90 °K) Stade II	(90-170 °K) Stade III	(170-300 °K) Stade IV	($T > 300$ °K) Stade V
Mg 99,95 %	24	22	31	22,5	0,5
Mg 99,995 %	32	26	30	10,8	1,2

TABLEAU XIII

La figure 37 met en évidence l'évolution du spectre de restauration depuis 4 °K pour deux irradiations dont les flux diffèrent d'un facteur 20.

Au-dessous de 25 °K l'évolution du spectre n'est pas significative pour la forte dose d'irradiation. En effet un réchauffage jusqu'à 25 °K est intervenu en fin d'expérience. Cet incident technique s'est traduit sur la courbe d'augmentation de la résistivité en fonction du flux par une marche descendante dont la hauteur représentait 15 % de l'augmentation de résistivité obtenue au moment de l'incident.

Dans le deuxième stade de restauration (35-90 °K) l'augmentation de la dose de l'irradiation conduit à une sous-structure moins bien résolue. Pour le sous-stade situé entre 35 et 45 °K on observe une tendance très marquée à la saturation lorsque la dose augmente. En effet, la croissance observée pour ce sous-stade est inférieure à celle de l'ensemble du stade (fig. 37). Les températures des maxima des deux premiers sous-stades observés dans cette zone (36-45) (45-55 °K) apparaissent relativement stables lorsque la dose d'irradiation augmente.

Lorsque la dose de l'irradiation augmente de 5.10^{16} à $1,2.10^{18}$ n/cm² ($E > 0,1$ MeV), l'allure de la restauration dans le stade III (90-170 °K) se conserve. Son importance croît sensiblement dans le même rapport que celui des flux. Il est important de noter que l'ensemble des deux sous-stades composant cette zone de restauration se déplace vers les basses températures d'environ 10°. L'étude du stade III en fonction de la dose de l'irradiation a été étendue à une plus grande gamme de flux au cours d'irradiations à 77 °K). Sur les figures 38 et 39 sont représentées les courbes de recuits isochrones pour différentes irradiations de magnésium 99,995 %. Toutes ces expériences confirment la présence de deux sous-stades (III_A et III_B)

dans le stade III. Pour les fortes doses l'influence de la pureté du matériau sur l'importance de III_B n'est pas sensible. On peut observer sur les figures 39 et 40 que pour les plus fortes doses d'irradiation, les sous-stades III_A et III_B ont une importance sensiblement égale.

Nous avons étudié la restauration dans le stade V ($T > 300$ °K) pour des échantillons de qualité 99,95 % et 99,997 %. Ceux-ci ont été irradiés à 77 °K dans un flux intégré $\Phi = 1,2 \cdot 10^{19}$ n./cm². Après réchauffage à la température ambiante, ils sont montés sur un dispositif généralement utilisé pour l'étude par résistivité électrique d'échantillons trempés. L'étude de la restauration s'effectue par une méthode de recuits isochrones. Pour la mesure de la résistivité électrique, ce dispositif utilise la température de l'hélium liquide comme température de référence. Les courbes de recuits isochrones, pour les deux qualités de magnésium, sont reportées sur la figure 41. La restauration s'effectue dans un unique stade centré autour de 80 °C. Il est plus important en valeur absolue pour le magnésium le plus pur.

Etude de la restauration par des mesures d'énergie libérée.

Sur la figure 42 sont reportés pour différents flux intégrés les spectres d'énergie libérée depuis 27 °K et 77 °K.

La libération d'énergie emmagasinée s'effectue de façon semblable à la restauration de la résistivité électrique. On constate le décalage systématique en températures déjà observé dans le cas du béryllium. Cette figure met bien en évidence la saturation du sous-stade III_A lorsque l'importance de l'irradiation augmente. Par contre le sous-stade III_B n'est pas affecté par la saturation. En comparant ces résultats avec ceux obtenus pour la restauration de la résistivité, il apparaît que les sous-stades III_A et III_B sont mieux résolus dans le cas des mesures d'énergie libérée.

Sur la figure 43 nous avons reporté une courbe de restauration de la résistivité électrique et une courbe de libération de l'énergie emmagasinée (courbes obtenues après irradiation à 77 °K dans des flux voisins de $2,0 \times 10^{17}$ n./cm²). La courbe d'énergie exprime, en fonction de la température, la libération de l'énergie rapportée à l'énergie totale emmagasinée :

$$\frac{E}{E_T} = \frac{\int_{77 \text{ °K}}^{300 \text{ °K}} \frac{dE}{dT} - \int_{77 \text{ °K}}^T \frac{dE}{dT}}{\int_{77 \text{ °K}}^{300 \text{ °K}} \frac{dE}{dT}}$$

Sur cette même figure sont également représentées les courbes dérivées correspondantes. Ces représentations mettent en évidence les différences sensibles :

1° Les deux sous-stades III_A et III_B sont d'importance égale dans le cas des mesures d'énergie libérée. Cela n'est pas vrai pour la résistivité.

2° L'énergie libérée dans le stade IV est plus importante relativement que la variation de résistivité correspondante. Sur cette figure 43 nous avons reporté deux courbes dérivées de restauration de la résistivité. Celles-ci sont relatives à deux échantillons de magnésium

dont les concentrations en impuretés encadrent celle de l'échantillon étudié par énergie emmagasinée. On peut voir ainsi qu'il ne s'agit pas d'un effet dû aux impuretés.

Nous avons déterminé les valeurs du rapport $E/\Delta\rho$ pour les différents stades de la restauration. Les valeurs obtenues en utilisant les résultats représentés sur la figure 43, sont reportées dans le tableau XIV.

	III				IV	
	III _A		III _B			
Technique expérimentale	Δρ	E	Δρ	E	Δρ	E
Domaine de température	(103-143°K)	(110-150°K)	(143-163°K)	(150-170°K	> 163°K	>170°K
RESISTIVITE (μncm) Φ=2,1×10 ¹⁷ n.rap/cm ² T _{irrad} = 77 °K	0,0543		0,0150		0,0287	
ENERGIE LIBEREE (cal/g) Φ=1,7.10 ¹⁷ n.rap/cm ² T _{irrad} = 77 °K		0,125		0,087		0,165
E/Δρ (cal/g/μncm) Φ=2,1.10 ¹⁷ n.rap/cm ²	2,8		7,2		7,1	

TABLEAU XIV.

La valeur de $E/\Delta\rho$ déterminée pour le sous-stade III_A est très nettement inférieure à celles trouvées pour III_B et IV. Nous avons également déterminé les valeurs de ce rapport pour la restauration s'effectuant à plus basse température. Nous avons trouvé 3,50 cal/g/ μncm pour le domaine de température 30-65 °K et 3,0 cal/g/ μncm pour celui situé entre 65 et 85 °K. Ces valeurs sont proches de celle déterminée pour III_A. Un changement important intervient donc dans la valeur du rapport $E/\Delta\rho$ à partir de III_B. Nous serons amenés à tenir compte de ce résultat au cours de la discussion sur la restauration.

1-3 - Cinétiques de restauration.

L'étude de la restauration en fonction de la dose d'irradiation a montré un glissement vers les basses températures des maxima des deux sous-stades III_A et III_B. Une telle

évolution dans le cas d'un stade simple de restauration est caractéristique d'une cinétique d'ordre $\phi \neq 1$.

Nous avons déterminé la cinétique de restauration dans le sous-stade III_B . La figure 44 montre qu'au cours de recuits isothermes à 143,5 °K, plus de 60 % de la restauration s'effectue suivant un ordre de réaction $\phi = 2$.

Dans le cas de III_A il n'est pas possible d'effectuer la même détermination de l'ordre apparent de la cinétique, en raison du chevauchement des deux sous-stades III_A et III_B . De plus, les spectres d'énergie libérée et les courbes de résistivité laissent supposer que III_A est complexe. Le déplacement vers les basses températures de son maximum lorsque le flux augmente peut résulter d'une évolution de sa sous-structure.

La stabilité en température des deux sous-stades du stade II situés entre 35 et 55 °K (fig. 37) suggère que les processus de restauration correspondants s'effectuent suivant des ordres de réaction $\phi = 1$.

1-4 - Energies d'activation.

Par la méthode des tangentes, nous avons déterminé les énergies d'activation dans les sous-stades III_A et III_B . Les valeurs obtenues pour différentes températures sont reportées sur la figure 44. Les valeurs moyennes des énergies d'activation pour III_A et III_B sont respectivement $0,43 \pm 0,025$ eV et $0,48 \pm 0,025$ eV.

D'autres déterminations par la méthode de MEECHAN et BRINKMAN ont donné 0,40 eV pour III_A et 0,48 eV pour III_B .

Dans le cas des mesures d'énergie libérée, nous avons déterminé pour le sous-stade III_B une énergie d'activation égale à 0,57 eV. Cette valeur déterminée en adoptant un ordre de réaction $\phi = 2$ demeure toutefois assez incertaine.

Nous n'avons pas déterminé les énergies d'activation dans les autres stades de la restauration.

1-5 - Frottement intérieur.

Une étude par frottement intérieur à basse température du magnésium irradié a été effectuée dans le laboratoire du DM-SRMP (CEN-Grenoble). Ce travail a été réalisé par HILLAIRET et TRABUT [34]. Bien que ne faisant pas partie de notre travail de thèse, nous donnons ici quelques résultats présentant un certain intérêt pour la discussion de nos propres résultats concernant la restauration des défauts ponctuels dans le magnésium.

Des fils de magnésium de deux qualités (Mg 99,95 % et Mg 99,997 %) ont été irradiés à 77 °K. Le frottement intérieur mesuré à 77 °K dépend fortement de l'amplitude pour un échantillon non irradié. Après irradiation, les mesures à 77 °K montrent un frottement intérieur indépendant de l'amplitude, caractéristique d'un ancrage important des dislocations et une diminution du module de cisaillement atteignant 8 % pour un flux de $1,2 \cdot 10^{19}$ n, rap/cm².

Au cours du réchauffage (60°/heure), apparaît un pic de frottement intérieur centré

sur 150 °K indépendant de l'amplitude des oscillations et de la pureté du magnésium (fig. 45). La hauteur du pic augmente puis se sature en fonction de la dose d'irradiation. Ce pic de frottement interne se recuit à sa température d'apparition : en effet, il n'apparaît pas au cours d'un deuxième chauffage après recuit à 300 °K.

La mesure de la période des oscillations du pendule en fonction de la température permet de suivre les variations du module de cisaillement élastique. Après irradiation on observe, dans le domaine de température 77-300 °K (fig. 46), une évolution qui n'est pas monotone. Après recuit à 300 °K, le défaut de module constaté à 77 °K après irradiation est complètement restauré. Au cours du deuxième chauffage, le module varie de façon continue et parfaitement monotone. La comparaison des deux courbes de la figure 46 met en évidence les domaines de la restauration du module. On voit ainsi que dans l'intervalle de températures correspondant au sous-stade III_A (90-140 °K) la restauration est très faible. Par contre elle est importante dans le sous-stade III_B (140-170 °K), domaine de température pour lequel le pic de frottement intérieur a été observé.

1-6 - Observations par microscopie électronique.

Des observations par microscopie électronique ont été effectuées sur des échantillons de diverses qualités de magnésium après irradiation dans un flux de 1.10^{19} n, rap/cm² et recuit à la température ambiante. La figure 47 montre deux clichés relatifs à deux qualités de magnésium (Mg 99,995 % et Mg 99,9999 %). On observe dans les deux cas une densité importante d'amas de défauts sous la forme de "points noirs". De la comparaison des clichés, il ressort que les amas semblent être de plus grande taille dans le cas du magnésium 99,9999 %.

Du magnésium 99,95 %, irradié dans les mêmes conditions ($\phi \sim 1.10^{19}$ n, rap/cm²), a également été observé par microscopie électronique. Dans ce cas, la présence des "points noirs" n'a pas été mise en évidence de façon certaine.

Il semble donc que la grosseur des amas soit en relation avec la concentration d'impuretés dans le métal. Les amas observés pour le magnésium 99,9999 % ont une taille moyenne d'environ 100 à 150 Å (fig. 47-b). Pour le magnésium 99,995 %, elle est de 20 à 50 Å (fig. 47-a). Pour le magnésium 99,95 % il est probable qu'au cours de la restauration des amas se forment dont la taille est inférieure au pouvoir de résolution du microscope (~ 15 Å).

Les figures 47-a et 48-b mettent en évidence des dislocations fortement ancrées par les amas de défauts. La figure 48-a montre une bande appauvrie en amas au voisinage d'un joint de grain, mettant en évidence le rôle joué par les joints de grains comme puits pour l'élimination des défauts ponctuels. Au voisinage des dislocations par contre, on ne constate pas de diminution de la densité des amas. Ces deux derniers points concernant les interactions avec les joints de grains et les dislocations caractérisent également les boucles de lacunes obtenues par trempe dans le magnésium [3].

Des observations ont été effectuées sur des échantillons de magnésium 99,995 % recuits à plus haute température afin d'étudier l'évolution et l'élimination des amas de défauts. Après un recuit de 15 minutes à 60 °C, on n'observe pas d'évolution significative de la densité et de la taille des amas observés après recuit à la température ambiante (fig. 49-a). Par contre,

après un recuit de 15 minutes à 100 °C, les petits amas ont disparé (fig. 49-b). Quelques rares boucles de diamètre 1 000 Å environ sont observées, réparties de façon très inhomogène au sein de la lame. Le domaine de température pour lequel on constate l'élimination des amas de défauts (60-100 °C) correspond exactement au dernier stade de la restauration de la résistivité électrique. Le recuit des boucles de diamètre 1 000 Å n'a pas été observé. Cependant, il est probable que ces boucles sont du type lacunaire et qu'elles s'éliminent à 200 °C environ. C'est à cette température en effet qu'intervient le recuit des boucles de lacunes de diamètre équivalent, obtenues par trempe dans du magnésium de pureté voisine [3].

2 - Irradiation par les électrons.

2-1 - Variation de la résistivité électrique en fonction du flux.

Les irradiations ont été effectuées à la température de l'hydrogène liquide par des électrons d'énergie $E_0 = 3$ MeV. L'excès de résistivité mesuré à 20 °K augmente en fonction du flux intégré suivant une loi sensiblement linéaire. La variation de résistivité par électron/cm² est de $3,9 \cdot 10^{-26}$ ncm.

Pour une irradiation dans un flux de $6,2 \cdot 10^{17}$ e⁻/cm², nous avons mesuré une augmentation de résistivité à 20 °K, $\Delta\rho = 0,024$ μncm.

2-2 - Restauration.

Nous n'avons pas étudié la restauration dans le domaine de températures 20-77 °K. Après réchauffage des échantillons jusqu'à 77 °K, on mesure

$$\frac{\Delta\rho_{77\text{ °K}}}{\Delta\rho_{20\text{ °K}}} = 0,75$$

La restauration s'effectue de façon continue entre 77 et 300 °K, et de façon très comparable à celle observée dans le cas des irradiations neutroniques. Cela est mis en évidence par la figure 50 où sont reportées les courbes isochrones de la restauration pour deux échantillons ayant été irradiés, l'un par des électrons, l'autre par des neutrons et présentant des concentrations de défauts du même ordre de grandeur (les augmentations de résistivité mesurées à 77 °K sont en effet peu différentes). De même que pour les irradiations par les neutrons, la restauration au-dessus de 77 °K se fait essentiellement dans le stade III (90-170 °K). Celui-ci comporte également les deux sous-stades observés dans le cas des irradiations par les neutrons. Toutefois, le sous-stade III_B est plus important ici, à l'inverse de ce qui est observé après irradiation neutronique.

Le stade IV de la restauration, correspondant au domaine de températures 170-300 °K, est également observé dans le cas des irradiations par les électrons. Il représente 25 % environ de l'excès de résistivité initial mesuré à 77 °K. La restauration est achevée à 98 % après un recuit à la température ambiante.

IV-A-2 - DISCUSSION DES RESULTATS.

1 - Etude de la création des défauts dans le magnésium irradié.1-1 - Irradiation par les neutrons.Nombre de paires de Frenkel créées par un neutron.

1° Estimation déduite des expériences de résistivité.

Pour une irradiation à faible dose ($5 \cdot 10^{16}$ n/cm² - énergie des neutrons $> 0,1$ MeV), l'augmentation de résistivité électrique en fonction du flux intégré suit une loi sensiblement linéaire. La pente de la droite est environ $0,76 \cdot 10^{-24}$ $\Omega\text{cm}/\text{n/cm}^2$.

En appliquant la règle de LUCASSON et WALKER ($\Delta\rho_{\text{pF}}/\% \text{ at.} \sim 4,4 \mu\Omega\text{cm}$), on peut calculer que le nombre moyen de paires de Frenkel créées par un neutron d'énergie supérieure à 0,1 MeV est :

$$N_{\text{pF}}/\text{n/cm}^2 \neq 75.$$

2° Calcul théorique.

Le nombre d'atomes déplacés par les neutrons peut également être calculé théoriquement en utilisant le modèle de sphères dures (cf. Annexe 1). On détermine dans le cas du magnésium une énergie critique d'ionisation :

$$E_c = 12,2 \text{ keV.}$$

L'énergie moyenne des atomes primaires créés par des neutrons d'énergie 0,1 MeV est :

$$\overline{E_p} = 7,65 \text{ keV.}$$

Le nombre moyen $\overline{v}$ d'atomes déplacés par un primaire est :

$$\overline{v} = \frac{E_c}{2 E_d} \left(1 - \frac{E_c}{2 E_{\text{max}}} \right)$$

S'il s'agit de neutrons monocinétiques, on calcule :

$$\overline{v} = 144$$

En fait, comme la population de neutrons est répartie suivant un spectre d'énergies supérieures à 0,1 MeV, on pourrait déterminer toute une série de valeurs de E_{max} supérieures à 15,3 keV. En conséquence, une limite supérieure de $\overline{v}$ peut être trouvée en prenant :

$$\bar{v}_{\max} = \frac{E_c}{2 E_d}$$

on calcule :

$$\bar{v}_{\max} = 244$$

Le nombre de paires de Frenkel créées par un neutron de 0,1 MeV est donné par :

$$N_{\text{pF}}/\text{n/cm}^2 = \sigma_D \cdot \bar{v} \cdot N$$

$$N : \text{nombre d'atomes/cm}^3 = 0,043 \cdot 10^{24}$$

σ_D : section efficace de déplacement du Mg pour des neutrons d'énergie supérieure à 0,1 MeV. Nous avons pris une valeur moyenne de la section efficace dans le domaine d'énergies $0,1 < E_0 < 1$ MeV : $\sigma_D = 5$ barns [40].

Pour $144 < \bar{v} < 244$ on calcule

$$32 < N_{\text{pF}}/\text{n/cm}^2 < 52$$

La valeur déterminée à partir des mesures de résistivité est de 1,5 à 2 fois supérieure aux valeurs calculées théoriquement. L'accord est relativement bon si on considère que dans la détermination expérimentale intervient la contribution du spectre de neutrons d'énergies comprises entre 0,1 MeV et de 50 eV, cette dernière énergie représentant deux fois l'énergie de seuil de déplacement. Toute cette partie du spectre n'est pas dosée. Nous avons vu dans le chapitre consacré au béryllium quelle était l'importance des neutrons intermédiaires. Un calcul théorique tenant compte de ces neutrons conduirait sans doute à une valeur plus proche de la valeur estimée à partir des mesures de résistivité.

Augmentation à 4 °K de la résistivité en fonction du flux intégré.

1) - Non linéarité à 4 °K de la variation de la résistivité en fonction du flux.

Comme pour le béryllium, nous avons observé un début de saturation lors d'une irradiation à 4 °K dans un flux intégré de $1,2 \cdot 10^{18}$ n/cm² ($E > 0,1$ MeV). De même, nous avons vérifié que la variation de pente suit une loi linéaire (fig. 51)

$$\frac{d \Delta \rho}{dt} = - P \Delta \rho + Q \quad (P \text{ et } Q : \text{constantes})$$

identique à celle mise en évidence pour d'autres métaux [37], [38]. Par extrapolation de la droite on déduit $\Delta \rho_{\infty}$, augmentation de résistivité correspondant à la saturation complète. Nous avons déterminé ainsi :

$$\Delta\rho_{\infty} = 1,45 \mu\text{ncm}$$

En supposant que la règle empirique de LUCASSON et WALKER est valable dans le cas du magnésium ($\Delta\rho_{\text{pF}}/\% \text{ at.} \sim 4,4 \mu\text{ncm}$), on peut estimer la concentration en paires de Frenkel à la saturation, soit :

$$(c_{\text{pF}})_{\infty} \sim 0,33 \%$$

A partir de cette concentration limite, on peut déduire une estimation du volume de recombinaison d'une paire de Frenkel. Celui-ci est égal à :

$$V_r = \frac{1}{2 (c_{\text{pF}})_{\infty}} = 150 \text{ vol. atomiques.}$$

A ce volume de recombinaison correspond une distance lacune-interstitiel de 3,3 distances interatomiques.

Les ordres de grandeur sont en bon accord avec ceux obtenus dans les métaux CFC [37]. On a vu que dans le béryllium une valeur de V_r du même ordre de grandeur est obtenue si on affecte aux paires de Frenkel une résistivité de l'ordre de $30 \mu\text{ncm}/\% \text{ at.}$

On doit remarquer toutefois que la possibilité d'un recuit thermique de défauts à 4 °K dans le magnésium entraîne un doute quant à la validité de cette détermination de V_r .

2) Influence de la pureté.

La figure 35 montre qu'à 4 °K la courbe de production des défauts en fonction du flux est indépendante de la teneur en impuretés du Mg utilisé. Dans le cas des métaux c.f.c. et de l'aluminium en particulier [49], [63], l'augmentation de résistivité en fonction du flux est sensible à la présence des impuretés, celles-ci ayant pour effet d'accroître les effets mesurés. Cela est généralement attribué à la défocalisation par les impuretés des chaînes de collisions focalisées. Dans le magnésium il est vraisemblable que les collisions ne peuvent pas se focaliser. En effet pour les directions $\langle 11\bar{2}0 \rangle$, les plus favorables à leur propagation, on calcule une énergie critique de focalisation (cf. Annexe 4) :

$$E_f \langle 11\bar{2}0 \rangle = 20,2 \text{ eV}$$

Cette énergie est sans doute inférieure à l'énergie de seuil de déplacement.

Augmentation à 77 °K de la résistivité en fonction du flux intégré.

Sur la figure 35 sont reportées les augmentations de résistivité à 77 °K en fonction du flux intégré de neutrons rapides dans le cas des deux qualités de magnésium étudiées.

Pour les faibles irradiations, l'augmentation de résistivité mesurée après irradiation à 77 °K est environ 3 fois plus faible que pour une irradiation à 4 °K alors que, au cours de la restauration d'un échantillon irradié à 4 °K, l'excès de résistivité restant à restaurer à 77 °K représente la moitié environ de l'excès initial mesuré à 4 °K. On peut attribuer cet écart à l'importance du recuit thermique des défauts au cours des irradiations à 77 °K. En effet, les paires de Frenkel s'annihilent instantanément car ces défauts ont une très faible énergie de recombinaison. Par ailleurs, le processus de la pointe thermique contribue à l'élimination de défauts stables à la température de l'irradiation (défauts libres). On peut remarquer également que pour les irradiations à 77 °K la restauration ne débute qu'à 90 °K environ. Cela est certainement dû au recuit thermique important pendant l'irradiation, mais aussi au fait que la température des échantillons peut s'élever au-dessus de 77 °K pendant l'irradiation.

Pour les flux intégrés de neutrons supérieures à $2 \cdot 10^{18}$ n.rap/cm², la tendance à la saturation devient très marquée. Cela est dû au recouvrement des différents volumes endommagés par les primaires conduisant à la limite à une concentration de défauts homogène et constante dans tout le volume.

La figure 35 met en évidence un écart sensible entre les courbes de production de défauts à 77 °K relatives aux deux qualités de magnésium. L'augmentation de résistivité est en effet plus faible pour le magnésium le plus pur. Cette observation est à rapprocher du fait que, pour des irradiations à 4 °K, la restauration dans les stades I et II (4-90 °K) est plus importante dans le cas du magnésium le plus pur (cf. tableau XIII). Ces résultats sont sans doute dus à un piégeage de défauts par les impuretés.

1-2 - Irradiations par les électrons.

Les irradiations par les électrons ont été effectuées à 20 °K. Nous avons vu que la restauration débutait dès 4 °K dans le cas des irradiations par les neutrons. Afin d'estimer les concentrations de défauts créés par les électrons, nous avons cherché à extrapoler jusqu'à 4 °K les augmentations de résistivité mesurées après irradiation à 20 °K.

Après réchauffage des échantillons à 77 °K, nous avons mesuré $\Delta\rho_{77^\circ\text{K}}/\Delta\rho_{20^\circ\text{K}} = 0,75$. Pour une faible irradiation par des neutrons ($\phi = 5 \cdot 10^{16}$ n/cm² - $E > 0,1$ MeV), on a mesuré $\Delta\rho_{77^\circ\text{K}}/\Delta\rho_{20^\circ\text{K}} = 0,72$. Les deux valeurs du rapport sont très voisines. Nous avons étendu cette similitude au domaine de température 4-20 °K. Dans le cas de la faible irradiation neutronique on a $\Delta\rho_{20^\circ\text{K}}/\Delta\rho_{4^\circ\text{K}} = 0,8$. Nous avons appliqué la valeur de ce rapport aux irradiations par les électrons.

Pour un flux de $6,2 \cdot 10^{17}$ e⁻/cm² ($E_0 = 3$ MeV) nous avons mesuré $\Delta\rho_{20^\circ\text{K}} = 0,024$ $\mu\Omega\text{cm}$. On calcule donc pour le même flux une augmentation de résistivité à 4 °K, $\Delta\rho_{4^\circ\text{K}} \neq 0,030$ $\mu\Omega\text{cm}$.

L'application au cas de l'irradiation par des électrons du rapport $\Delta\rho_{20^\circ\text{K}}/\Delta\rho_{4^\circ\text{K}}$ obtenu pour des irradiations par les neutrons conduit sans doute à une valeur sous-estimée de la concentration de défauts. En effet, l'importance du stade I de la restauration des défauts ponctuels est généralement plus grande pour les irradiations électroniques que pour les irradiations neutroniques. De plus, l'importance relative de la restauration dans le stade I dépend fortement de l'énergie des électrons. O'NEAL et CHAPLIN [9] ont irradié du magnésium avec des électrons de faible énergie (0,3 et 0,4 MeV). Dans ce cas la majeure partie de la restauration s'effectue entre 4 et 20 °K. Les valeurs du rapport $\Delta\rho_{20^\circ\text{K}}/\Delta\rho_{4^\circ\text{K}}$ sont respectivement de 0,19 et 0,26 pour les électrons de 0,3 et 0,4 MeV.

Si on admet la validité de la règle de LUCASSON et WALKER

($\Delta\rho_{\text{pF}}/\% \text{ at.} \sim 4,4 \mu\text{cm}$), la valeur calculée de l'augmentation de résistivité à 4 °K, $\Delta\rho_{4^\circ\text{K}} = 0,030 \mu\text{cm}$, permet d'obtenir une valeur sans doute par défaut du nombre de paires de Frenkel créées par un électron de 3 MeV. On calcule ainsi :

$$N_{\text{pF}/e^-/\text{cm}^2} = 4,7$$

En utilisant le modèle des chocs coulombiens (cf. Annexe 3), nous avons calculé le nombre théorique de paires de Frenkel créées par un électron de 3 MeV/cm² dans le magnésium. Nous avons obtenu :

$$N_{\text{pF}/e^-/\text{cm}^2} = 3,5$$

Cette valeur est inférieure à celle déduite de l'expérience. Toutefois l'accord est relativement bon. Nous avons effectué les mêmes estimations expérimentales et théoriques à partir des résultats de O'NEAL et CHAPLIN qui ont irradié du magnésium à 4 °K par des électrons de 0,3 et 0,4 MeV. Les estimations ont été effectuées pour l'irradiation à 0,4 MeV. Dans ce cas l'estimation expérimentale donne :

$$(N_{\text{pF}/e^-/\text{cm}^2})_{\text{exp}} = 0,8$$

Le calcul théorique conduit à :

$$(N_{\text{pF}/e^-/\text{cm}^2})_{\text{th.}} = 1,1$$

L'accord entre ces deux valeurs est bon. Les irradiations effectuées avec des électrons de faible énergie créent dans les métaux essentiellement des paires proches car les énergies moyennes des atomes primaires sont de l'ordre de grandeur de l'énergie de seuil de déplacement. Dans le cas de l'irradiation du magnésium par des électrons de 0,4 MeV, on calcule en effet une énergie moyenne transférée aux primaires $\overline{E_p} = 35 \text{ eV}$.

En conséquence, étant donné le bon accord entre les déterminations théorique et expérimentale, on peut penser que les valeurs de l'énergie de seuil de déplacement et de la résistivité des paires que nous avons adoptées pour nos estimations sont d'un bon ordre de grandeur.

2 - Etude de la restauration des défauts.

La discussion est effectuée dans le cadre des modèles généralement admis pour la restauration des défauts ponctuels créés par irradiation dans les métaux (cf. Annexe 5).

2-1 - Restauration entre 4,2 °K - 35 °K

STADE I

La restauration commence dès 4,6 °K et ce de façon importante (fig. 37). Elle s'effectue ensuite de façon relativement lente entre 10 °K et 35 °K. La restauration au-dessous de 35 °K représente de 24 à 32 % de l'excès initial de résistivité, selon la pureté des échantillons étudiés.

O'NEAL et CHAPLIN [9] observent après irradiation à 4,2 °K par des électrons de faible énergie (0,3 et 0,4 MeV) deux stades de restauration situés à 6,8 °K et 11,4 °K représentant environ 80 % de l'augmentation initiale de résistivité. Ces auteurs pensent en outre qu'un recuit de défauts intervient à la température même de l'irradiation, ce qui semble en accord avec l'important recuit observé dans nos expériences dès 4,6 °K, et se poursuivant jusqu'à 6 °K. Aucune interprétation de la restauration n'est donnée par ces auteurs.

Les différences constatées entre les résultats de O'NEAL et CHAPLIN et les nôtres sont importantes. Celles-ci portent sur l'importance de la restauration à basse température et les étapes de la restauration. Les écarts peuvent s'expliquer par le fait que ces expériences ont été réalisées avec des particules de nature et d'énergies très différentes. Les dommages créés sont en conséquence très dissemblables. Dans le cas des irradiations par des électrons de faible énergie, ceux-ci ne créent en moyenne qu'une paire de Frenkel tandis que dans le cas des irradiations par des neutrons, ceux-ci créent environ 75 paires de Frenkel. On peut donc penser que la répartition des défauts dans le métal est très différente pour ces deux types d'expériences. De plus, les concentrations de défauts mises en jeu ne sont pas du même ordre de grandeur ($\Delta\rho = 3,86.10^{-8}$ Ωcm pour $\phi = 5.10^{16}$ n/cm^2 dans le cas de nos résultats contre $\Delta\rho = 9,08.10^{-10}$ Ωcm pour $\phi = 1,1.10^{17}$ e^-/cm^2 dans le cas des expériences de O'NEAL et CHAPLIN).

L'important stade de restauration que nous avons observé entre 4,2 °K et 6 °K est sans doute à associer à la recombinaison de paires de Frenkel "très proches".

Au-delà de 6 °K et jusqu'à 35 °K, la restauration est nulle ou relativement lente. Un tel spectre est inhabituel pour le stade I des métaux faiblement irradiés où l'on observe le plus souvent une restauration s'effectuant en plusieurs sous-stades. Les caractéristiques de la restauration dans ce domaine de température ne permettent donc pas d'envisager la migration libre d'interstitiels dans le stade I. La restauration entre 6 °K et 35 °K pourrait être due à la recombinaison de certaines configurations de paires de Frenkel et en particulier des paires de Frenkel "moins proches".

2-2 - Restauration au-dessus de 35 °K.

La discussion de la restauration au-delà de 35 °K dépend essentiellement de l'interprétation que l'on donne des processus de recuit intervenant dans le domaine de températures 90 °K - 170 °K.

Nous pensons que le stade 90 °K - 170 °K de la restauration représente le stade III de la restauration des métaux irradiés dans la nomenclature généralement admise pour les métaux de structure c.f.c.. Parmi les études comparatives de la restauration des défauts ponctuels créés par irradiation, certaines tendent à relier la température des différents stades avec la température de fusion T_F . Dans le cas du stade III du magnésium irradié, les températures correspondant au maximum des deux sous-stades sont $0,135 T_F$ pour III_A et $0,155 T_F$ pour III_B . Dans le cas du béryllium, nous avons montré que la restauration se termine par un important stade III situé à environ 250 °K soit $0,16 T_F$. Les valeurs déterminées pour le magnésium et le béryllium sont voisines de celle déterminée par NIHOUL [64] pour le stade III du zinc, autre métal hexagonal compact ($= 0,15 T_F$). De même pour certains métaux de structure cubique centrée (W, Nb, Ta, Ti, Mo), le stade III est observé à $0,15 T_F$ [65]. Dans le cas des métaux de structure cubique à faces centrées, il est généralement situé à des températures de l'ordre de $0,2 T_F$.

Le stade situé entre 90-170 °K correspondant au stade III, on justifie ainsi le découpage de la restauration en stades II (35-90 °K) et IV (170-300 °K). Le stade V dans la nomenclature généralement admise correspond à la dissolution des amas de défauts. C'est ce qui a été observé dans le domaine de températures 300-400 °K.

La discussion de la restauration s'effectuant au-dessus de 35 °K est axée sur celle de l'important Stade III. Nous discuterons tout d'abord de l'interprétation de ce stade et ensuite de celles des autres stades II, IV et V.

STADE III - (90 - 170 °K).

Rappel des principaux résultats expérimentaux.

Le stade III se compose de deux sous-stades III_A et III_B . Pour une faible irradiation, le sous-stade III_A mis en évidence par des mesures de résistivité électrique est plus important que III_B . Pour une dose équivalente, l'étude par mesure d'énergie libérée conduit à deux sous-stades d'importance sensiblement égale. Les valeurs du rapport de l'énergie libérée et de la variation de la résistivité pour chacun des deux sous-stades sont assez différents. Pour III_A nous avons déterminé $2,8 \text{ cal/g}/\mu\text{ncm}$, pour III_B $7,2 \text{ cal/g}/\mu\text{ncm}$ (cf. tableau XIV).

La valeur déterminée pour III_A est voisine de celle obtenue pour II. De même III_B et IV ont des valeurs voisines. On peut donc penser que de part et d'autre de 140 °K la restauration se fait soit par des défauts de type différents, soit par des processus d'élimination fondamentalement différents comme l'élimination de défauts simples dans un cas, et la formation d'amas de défauts dans l'autre cas.

Lorsque la dose de l'irradiation augmente, nous avons observé expérimentalement (fig. 39, 40, 42) que le sous-stade III_A se saturait contrairement au sous-stade III_B qui, lui, continue de croître.

Caractéristiques du sous-stade III_B.

1° Les résultats obtenus par HILLAIRET et al. [3] sur la restauration après trempe à 4 °K du magnésium de haute pureté (99,9999 %) montrent de façon assez certaine que des défauts de type lacunaire migrent à 130 °K environ.

2° L'énergie de migration des lacunes peut être calculée à partir de la relation :

$$E_{ml} = E_{autodif} - E_{fl}$$

avec

E_{fl} : énergie de formation d'une lacune

$$(0,8 < E_{fl} < 0,9) \quad [1]$$

$$E_{autodif} = 1,39 \text{ eV} \quad [66]$$

On obtient :

$$E_{ml} \neq 0,54$$

Cette valeur est peu différente de l'énergie d'activation moyenne (0,48 eV) que nous avons déterminée pour III_B.

3° Dans le sous-stade III_B l'ordre $\phi = 2$ de la cinétique de restauration indique un processus de migration libre d'un défaut se recuisant par une réaction biatomique. Comme l'ont envisagé FROIS [67] et CERESARA [68] dans le cas du stade III de l'Al irradié, la formation de bilacunes par migration au hasard de monolacunes et l'élimination instantanée de celles-ci, en particulier sur des amas d'interstitiels formés à plus basse température, pourrait rendre compte d'une telle cinétique de réaction.

4° La figure 36 montre que pour une faible irradiation le stade III_B est plus important pour le magnésium le moins pur. On peut expliquer cela par le fait que des impuretés jouent sans doute un rôle important dans la nucléation des amas d'interstitiels formés à plus basse température et que ceux-ci sont plus petits mais plus nombreux pour le magnésium le moins pur. La migration des lacunes conduit soit à leur élimination sur des amas d'interstitiels formés à plus basse température, soit à la formation d'amas de lacunes. Un plus grand nombre d'amas d'interstitiels contribue à augmenter l'efficacité du processus d'annihilation et à réduire celle du

processus par agglomération. On explique bien ainsi la restauration plus importante dans III_B pour le magnésium le moins pur, si, comme le suggèrent les expériences de trempe [3], la contribution à la résistivité des lacunes isolées est peu affectée par l'agglomération.

5° Le domaine d'apparition du pic de frottement intérieur et de la restauration du module qui lui est associée correspond à l'important sous-stade III_B de restauration observé par résistivité électrique et énergie libérée. Il est logique de penser qu'il existe une relation étroite entre ces différents résultats expérimentaux. L'analyse du pic de frottement intérieur en tant que pic de relaxation conduit à courbe symétrique pour une fréquence des oscillations de 2,7 hertz. Au contraire, à 0,4 hertz le pic présente une structure. L'existence de cette structure ne permet pas de conclure s'il y a ou non déplacement en température du pic de frottement intérieur, ce qui aurait caractérisé de façon non équivoque l'existence d'un processus de relaxation. Dans le cas des expériences à 2,7 hertz, la mesure de la largeur à mi-hauteur du pic conduit à une énergie d'activation de 0,2 eV environ. Toutefois, cette détermination a certainement peu de sens physique étant donné qu'elle suppose un processus de relaxation à temps de relaxation unique.

Ces expériences de frottement interne permettent cependant d'envisager avec prudence l'hypothèse d'une migration dans III_B de défauts ponctuels donnant lieu à un phénomène de relaxation. Nous évoquerons dans la suite de la discussion la nature des défauts susceptibles de produire ce frottement intérieur.

Etant donné l'incertitude qui subsiste quant à la nature exacte du pic de frottement intérieur observé, on ne peut se limiter à une interprétation par processus de relaxation. Le pic de frottement intérieur est indépendant de l'amplitude des oscillations et de ce fait il n'est probablement pas dû à un réarrangement de dislocations. Par contre, des interactions complexes entre défauts et dislocations pourraient rendre compte d'un tel pic de frottement intérieur.

6° L'importante diminution du module constatée après irradiation par HILLAIRET et TRABUT n'est pas classique. Elle a été observée par quelques auteurs en particulier dans le cuivre [69], [70]. Le désancrage des dislocations peut conduire à une diminution du module. Il est cependant exclu que l'irradiation puisse donner un désancrage. Cela est d'ailleurs bien mis en évidence par l'effet de l'irradiation sur le frottement intérieur mesuré en fonction de l'amplitude des oscillations. Avant l'irradiation, le frottement intérieur mesuré à 77 °K est fortement dépendant de l'amplitude. Après il est indépendant pour la même gamme d'amplitudes.

La variation négative du module mesurée après irradiation est donc un effet intrinsèque dû à la présence des défauts ponctuels. HILLAIRET a recensé les différents effets susceptibles de rendre compte de la variation négative du module observée après irradiation. Il envisage successivement :

a) - Un abaissement de module associé à un phénomène de relaxation. La variation de module est liée à la hauteur du pic de relaxation correspondant par :

$$\frac{\Delta G}{G} \neq \frac{2 \delta_{\max}}{\pi}$$

Compte tenu de la valeur du décrément ($\delta_{\max} \sim 10^{-2}$) au maximum du pic de frottement intérieur, cet effet est très largement insuffisant pour rendre compte de la variation de module observée dans le stade III_B ($\Delta G/G = - 5 \%$).

b) Un effet élastique qui est la somme de trois contributions :

- inhomogénéité élastique locale
- dilatation du réseau
- déformation de cisaillement.

Des calculs ont été faits dans le cas du cuivre (DIENES, NABARRO, TOWNSEND) qui conduisent pour les deux premières contributions à :

- un effet positif sur le module pour l'interstitiel (+ 5 à 10 % par at %)
- un effet négatif sur le module pour la lacune (- 1 à 2 % par at %).

L'estimation faite par ZENER pour la troisième contribution est très imprécise.

c) Un effet de déformabilité des défauts. La présence dans le cristal de défauts déformables introduit une déformation supplémentaire. Dans ce cas la diminution de module observée expérimentalement après irradiation n'est qu'apparente et n'affecte pas les constantes élastiques propres au cristal.

Expérimentalement, J.R. TOWNSEND [69] et H. DIECKAMP [70] ont observé dans le cas du cuivre irradié une diminution de module de l'ordre de 140 % par % de paires de Frenkel. La variation de module induite par une paire de Frenkel est de signe négatif. Il semble donc que la contribution positive calculée pour l'interstitiel et qui serait due à une inhomogénéité élastique locale ne soit pas en accord avec l'expérience.

Discussion sur l'interprétation du stade III.

Le point essentiel de l'interprétation du stade III réside dans le fait bien établi expérimentalement que des défauts de type lacunaire migrent dans III_B. A partir de là, la restauration dans III_A peut être le fait d'autres défauts lacunaires, bilacunes par exemple, ou de défauts de type interstitiel, interstitiels libres en particulier. Ces deux possibilités, envisagées dans le cadre des deux modèles généralement admis pour la restauration des métaux irradiés (cf. Annexe 5), seront évaluées successivement en fonction des résultats expérimentaux.

Modèle lacunaire.

Si on se réfère à ce modèle pour l'interprétation de la restauration dans le magnésium, la migration des interstitiels s'effectue à des températures inférieures à 90 °K et conduit soit à leur élimination sur des lacunes immobiles, soit à la formation d'amas, soit enfin au piègeage sur des impuretés. Nous envisageons successivement l'interprétation de la restauration dans III_A par le dépiégeage des atomes interstitiels ou par la migration des bilacunes, le sous-stade III_B étant le fait de la migration des monolacunes.

Si on admet que le dépiégeage des interstitiels intervient dans III_A , on explique aisément la saturation qui affecte ce sous-stade lorsque la dose de l'irradiation augmente (fig. 42). Toutefois, pour des faibles irradiations à 4 °K, l'amplitude de ce sous-stade est indépendante de la pureté du magnésium utilisé (fig. 36) contrairement à ce que l'on observe pour III_B . On ne peut pas non plus expliquer la faible importance de III_A dans le cas des irradiations par les électrons. L'ensemble de ces faits expérimentaux semble selon nous peu favorable à un important dépiégeage d'interstitiels dans III_A .

Si on interprète le sous-stade III_A par la migration de bilacunes, on explique facilement sa faible importance relative après irradiation par des électrons. En effet, la probabilité de former des bilacunes dans ce cas est notablement plus faible que dans le cas d'irradiation par des neutrons. Par contre, il est difficile d'expliquer la saturation de III_A pour les flux importants de neutrons. De même, l'absence de restauration du module dans III_A est difficile à comprendre si le défaut de module observé après irradiation est précisément dû aux défauts ponctuels. En effet, si on reprend l'idée bien classique que les lacunes n'ont qu'une faible action sur le module (effet élastique) on peut expliquer l'absence de variation de module dans III_A en supposant qu'il y a agglomération de bilacunes et que leur contribution au défaut de module n'est que très peu modifié par l'agglomération. Mais alors on comprend mal l'importante variation de résistivité observée dans III_A , les expériences de trempe ayant montré que la résistivité des lacunes en amas est peu différente de la résistivité des lacunes isolées.

Une autre objection importante à la migration des bilacunes dans III_A est fournie par les valeurs très différentes du rapport $E/\Delta\rho$ déterminées pour III_A et III_B . En effet, il est raisonnable de penser que les processus d'élimination des bilacunes dans III_A et des monolacunes dans III_B sont peu différents, c'est-à-dire qu'il n'y a pas, par exemple, formation d'amas de lacunes pour un sous-stade et annihilation sur des puits fixes ou sur des amas d'interstitiels pour l'autre sous-stade. On ne peut, dans ces conditions, expliquer l'écart entre les valeurs de $E/\Delta\rho$ pour III_A et III_B .

Dans le cadre du modèle lacunaire, le sous-stade III_B est interprété par la migration des monolacunes. Pour expliquer le pic de frottement intérieur supposé être un pic de relaxation, on pourrait penser que le frottement intérieur est dû à la migration de bilacunes "fraîches" formées à partir des monolacunes. En fait, l'énergie de migration des bilacunes étant inférieure à celle des monolacunes, la fréquence de saut des bilacunes "fraîches" dans III_B serait très grande et il apparaît impossible que l'on puisse observer à la fréquence de 1 cycle/sec un pic de relaxation associé à la migration des bilacunes "fraîches". Dans le cadre du modèle lacunaire, le pic de frottement intérieur est dû plus probablement à des interactions défauts-dislocations.

L'importante restauration du module observée dans III_B est sans doute à associer à l'élimination des lacunes sur des amas d'interstitiels.

Modèle interstitiel.

Une interprétation de la restauration dans le cadre de ce modèle conduit à associer le sous-stade III_A à la migration des interstitiels libres. Les processus d'élimination envisagés sont les suivants : élimination sur des puits fixes ou sur des lacunes encore immobiles, formation d'amas.

Certains résultats expérimentaux suggèrent que le processus d'agglomération des interstitiels est prépondérant. L'important sous-stade III_B dû au recuit de défauts lacunaires nécessite qu'une égale concentration d'interstitiels ait formé des amas à plus basse température. Nous avons vu que nous expliquions ainsi relativement bien l'influence de la pureté du métal sur l'importance de la restauration dans III_B (cf. page 83). L'absence de variation de module dans III_A peut s'expliquer si on suppose que l'agglomération des interstitiels est un processus très important et que le défaut de module est peu affecté par la formation des amas.

Ce modèle par contre ne fournit pas d'explication satisfaisante pour d'autres résultats expérimentaux se rapportant au sous-stade III_A . On ne comprend pas, par exemple, la saturation de ce sous-stade lorsque le flux intégré de neutrons augmente. De même l'importance réduite de III_A après irradiation par des électrons ne trouve pas d'explication simple.

Dans le cadre du modèle interstitiel la restauration dans III_B est associée à la migration des défauts lacunaires tels que bilacunes et monolacunes. On peut concevoir alors que le pic de frottement intérieur observé dans III_B est un pic de relaxation dû à la migration des bilacunes créées au cours de l'irradiation. En effet, pour une forte irradiation, la probabilité de créer deux lacunes en position de premiers voisins n'est pas négligeable. Il convient toutefois de rappeler les réserves faites quant à la nature du pic de frottement intérieur (cf. page 84).

La restauration du module dans III_B s'explique par l'annihilation de défauts lacunaires sur des amas d'interstitiels formés dans III_A .

Dans le cas du modèle interstitiel, on comprend plus aisément la différence entre les valeurs du rapport $E/\Delta\rho$ déterminées pour les deux sous-stades III_A et III_B . En effet, les défauts qui migrent sont de types différents de même que les processus d'élimination (agglomération d'interstitiels dans III_A , élimination de lacunes sur des amas d'interstitiels dans III_B). Il convient toutefois de faire remarquer que les processus que nous avons évoqués ci-dessus ne sont certainement pas uniques. En effet, il est probable que des interstitiels s'éliminent sur des lacunes immobiles dans III_A de même que des lacunes forment des amas lacunaires dans III_B .

Les différents arguments expérimentaux que nous avons évalués dans le cadre des deux modèles ne nous permettent pas de dégager une interprétation unique des résultats obtenus. Certes le sous-stade III_B est à associer à la migration des lacunes. Pour l'interprétation de III_A , il semble toutefois que la migration des interstitiels dans ce stade permet de mieux rendre compte des résultats expérimentaux.

STADE II (35 - 90 °K).

Le stade II se compose essentiellement de deux sous-stades bien résolus et stables en température, précédant un fond continu de restauration qui s'étend de 60 à 90 °K. Cette zone de restauration représente, pour une faible irradiation, 26 % du total dans le cas du magnésium 99,995 % contre 22 % dans le cas du magnésium 99,95 %.

Dans le cadre du modèle lacunaire, la migration des interstitiels libres pourrait intervenir dans le stade II. Nous avons vu en effet que la forme de la restauration au-dessous de 35 °K ne permettait pas d'envisager la migration des interstitiels libres dans le stade I. Cependant, les expériences que nous avons effectuées dans le domaine de température 60-90 °K sont insuffisantes pour pouvoir identifier un sous-stade présentant les caractéristiques d'un processus de migration libre.

L'interprétation classique du stade II, dans le cadre du modèle interstitiel, est le dépiégeage des paires de Frenkel. Dans le cas du magnésium l'importance de ce stade augmente lorsque le métal est plus pur (cf. tableau XIII). Il semble donc difficile d'expliquer ce stade par un recuit de paires de Frenkel dont les atomes interstitiels seraient piégés par des impuretés. Cette zone de restauration pourrait alors être attribuée au recuit de certaines configurations de paires de Frenkel "moins proches". Toutefois, cette interprétation n'est pas pleinement satisfaisante en raison de l'importance de ce stade comparée à la faible amplitude de la restauration entre 6 et 35 °K (stade I) également attribuée au recuit de paires "moins proches". D'autre part, cela revient à donner aux paires de Frenkel un très large spectre d'énergies de recombinaison.

STADE IV (170 - 300 °K).

La restauration dans ce domaine de température est très sensible à la concentration d'impuretés dans le métal. Ce stade représente 22,5 % de l'augmentation de résistivité mesurée à 4 °K pour le magnésium 99,95 % contre 10,8 % pour le magnésium 99,995 % (cf. tableau XIII).

On peut penser qu'un dépiégeage thermique de lacunes est, en partie, à l'origine de la restauration dans ce stade. Le recuit des défauts dépiégés peut se faire par annihilation sur des amas d'interstitiels ou par agglomération sur des amas de lacunes.

Dans ce domaine de température (170 - 300 °K), nous envisageons également la possibilité pour les amas de lacunes formés dans le stade III de se réorganiser. L'existence d'un tel processus nous est suggéré par les expériences de trempe effectuées par HILLAIRET et al. [3]. En effet, pour des échantillons de magnésium ultra-pur trempés à 4 °K et amincis à 190 °K, les observations par microscopie électronique à la température ambiante n'ont pas révélé la présence de boucles de lacunes. Par contre, un recuit de 15 minutes à 250 °K précédant l'amincissement à 190 °K fait apparaître de nombreuses boucles. De plus, l'étude de la restauration de la résistivité après trempe a montré que les défauts lacunaires simples mono- ou bi-lacunes migrent dès 130 °K. Il est donc logique de penser que, dans le cas de la trempe, les boucles de lacunes se forment entre 190 et 250 °K à partir de lacunes piégées et à partir de petits amas de lacunes formés au cours de la trempe ou à la suite de la migration des monolacunes.

Dans le cas de l'irradiation les processus sont plus complexes du fait de la présence des amas d'interstitiels formés à plus basse température. En effet, il est probable que les amas d'interstitiels et de lacunes coexistent à la fin du stade III. Aussi le grossissement des boucles de lacunes, tel qu'il est observé après trempe, peut être empêché par la présence des amas d'interstitiels qui jouent le rôle de puits pour les lacunes.

En définitive, on pense que le stade IV est dû, pour une part à un dépiégeage de lacunes, pour l'autre part à une réorganisation des amas de lacunes. Par ces deux processus une partie des défauts lacunaires mis en jeu s'élimine sur les amas d'interstitiels, ce qui se traduit par une restauration de la résistivité électrique.

STADE V (300 - 400 °K)

Ce stade représente moins de 2 % de l'ensemble de la restauration.

Les expériences de résistivité électrique et les observations de microscopie électronique mettent en évidence dans ce domaine de température un stade de restauration associé à l'élimination des amas de défauts. La température d'élimination de ces amas est notablement inférieure à celle des boucles de lacunes observées après trempe et dont le diamètre est égal ou supérieure à $1\ 000\ \text{\AA}$. Celles-ci s'éliminent à 200 °C environ [3].

Nous attribuons la restauration dans le stade V à la dissociation des amas ou petites boucles de lacunes, et, par voie de conséquence, à la dissolution des amas d'interstitiels par les lacunes. L'écart en température observé par rapport à la dissociation des boucles de trempe s'explique par la différence de taille des défauts mais aussi par un nombre de sauts de guérison beaucoup plus faible dans le cas des lacunes d'irradiation.

La disparition de l'ancrage observé par frottement intérieur, qui ne concerne sans doute qu'un petit nombre de défauts, intervient à 200 °C [34]. Cette température correspond au dernier stade observé au cours de la restauration de la résistivité électrique d'échantillons de magnésium écroui à 77 °K. Ce stade est celui de la recristallisation du magnésium (cf. Section IV-B).

Le tableau XV résume les différentes interprétations des stades de la restauration que nous avons évoquées au cours de la discussion.

Modèle	STADE I	STADE II	STADE III	STADE IV	STADE V
Modèle "Lacunaire"	Paires Proches $I_E \rightarrow$ Interstitiels libres	Dépiégeage des interstitiels	Bilacunes	Lacunes Dépiégeage des lacunes	Dissociation des amas
Modèle "Interstitiel"	Paires proches	Dépiégeage des paires de Frenkel	Interstitiels	Lacunes Dépiégeage des lacunes	Dissociation des amas
Mg	I (< 35 °K)	II (35-90 °K)	III _A (90-140 °K)	III _B et IV (140-300 °K)	V (> 300 °K)
Modèle "Lacunaire"	T < 10°K : Paires proches 10 < T < 35°K : Paires "moins proches" ----- 46-60 °K : Migration de l'interstitiel libre (En fait aucun stade ne présente les caractéristiques d'un stade de migration libre).	Pas d'interprétation	- III _A Nous envisageons deux possibilités : 1) Dépiégeage des interstitiels 2) Migration des bilacunes - III _B Migration des lacunes - IV Dépiégeage des lacunes	- III _A Migration des interstitiels conduisant essentiellement à la formation d'amas d'interstitiels - III _B Migration des bilacunes et ensuite des lacunes conduisant : - à l'élimination sur les amas d'interstitiels - à la formation d'amas de lacunes - IV Dépiégeage de lacunes qui contribuent : - à faire grossir les amas de lacunes - à diminuer la taille des amas d'interstitiels	Dissociation des amas de lacunes
Modèle "Interstitiel"	T < 10°K : Paires proches 10 < T < 35 °K : Paires "moins proches"	Dépiégeage de paires ou Paires "moins proches"			Comme ci-dessus

TABLEAU XV - Différentes interprétations envisagées pour la restauration du magnésium irradié.

SECTION IV-B - MAGNESIUM - DEFAUTS PONCTUELS CREES PAR ECROUissage.

IV-B-1 - ETUDE DE LA CREATION DES DEFAUTS PONCTUELS PAR DEFORMATION PLASTIQUE.

Nous avons écroui par traction des fils ($\phi = 0,5$ mm) de magnésium 99,95 % à la température de l'azote liquide. Les allongements atteints pour la rupture sont de 3 à 4 % environ pour des fils sans prises de potentiel et de 1,7 % lorsque des prises de potentiel en cuivre sont soudées sur l'échantillon.

Pour plusieurs échantillons nous avons déterminé la variation de résistivité au cours de la déformation plastique (fig. 52). Elle est de la forme :

$$\Delta\rho = C \epsilon + D$$

ϵ : allongement plastique déterminé à partir de l'enregistrement de la courbe de traction $\sigma = f(\epsilon)$.

D : constante difficile à déterminer compte tenu de l'incertitude sur le début du domaine plastique.

C : varie pour différents échantillons entre 1,9 et $2,1 \cdot 10^{-8} \mu\Omega\text{cm}/\%$.

Le tableau XI permet de comparer les valeurs de C avec celles obtenues pour le béryllium et pour d'autres métaux hexagonaux. On peut constater que les valeurs obtenues pour le magnésium sont voisines de celles du béryllium et du cadmium.

IV-B-2 - ETUDE DE LA RESTAURATION.

Pour l'étude de la restauration, nous avons déformé, par compression à 77 °K des fils de magnésium 99,95 % ($\phi = 0,5$ mm). Le taux de déformation mesuré suivant la direction de la compression était de 16 %.

La restauration se fait de façon continue (fig. 53). Cependant, la courbe dérivée met en évidence trois stades (90-170 °K), (170-400 °K), (400-550 °K).

Le domaine de température occupé par le premier stade observé dans le magnésium déformé correspond sensiblement au stade III observé dans le cas de l'irradiation. Ce stade est sans doute dû à la migration de défauts ponctuels relativement simples. On pense que ces défauts sont plus particulièrement du type lacunaire.

Le stade de restauration large et complexe qui apparaît entre 170 et 400 °K a été observé antérieurement par BEEVERS [7], CHARP [11] et MONTARIOL [12]. L'étude de la restauration des défauts ponctuels créés par irradiation a montré que dans le domaine de température 170-300 °K intervenaient :

- un dépiégeage de lacunes qui vont s'annihiler ou se condensent sur des amas préexistants,
- sans doute un réarrangement des amas de lacunes.

Pour des échantillons irradiés de magnésium 99,995 et 99,9999 %, les observations par microscopie électronique ont révélé l'existence de petits amas de défauts après recuit à la température ambiante. Dans le cas du magnésium 99,95 %, ces petits amas n'ont pas été mis en évidence de façon certaine par les observations de microscopie électronique. Toutefois, l'étude par résistivité électrique a montré qu'il existait pour les qualités de magnésium 99,95 % et 99,997 % un stade de recuit de ces petits amas situé entre 330 et 370 °K. La courbe dérivée de la restauration du magnésium écroui présente un épaulement dans ce domaine de température. On peut donc penser que ce large et complexe stade de restauration s'étendant de 170 à 400 °K correspond en partie au moins à un dépiégeage de défauts, à une coalescence ou à une redistribution des petits amas créés par l'écrouissage. A la fin de ce grand stade (~ 360 °K) intervient sans doute l'élimination de ces amas.

En comparaison avec les résultats obtenus pour le béryllium écroui on peut envisager également dans ce stade de la restauration des réarrangements du réseau de dislocations. Il convient de noter que ce large stade n'apparaît pas dans un monocristal de magnésium déformé à 90 °K [11] ni dans le magnésium de zone fondue, dans lequel la recristallisation a lieu dès 0 °C [12].

Le stade de restauration situé entre 400 et 550 °K dans le magnésium bisublimé est certainement lié à la recristallisation, conformément aux résultats obtenus par MONTARIOL et al. [12] sur du magnésium de même qualité.

CHAPITRE V

BERYLLIUM ET MAGNESIUM

COMPARAISON DES EFFETS D'IRRADIATION ET DES EFFETS D'ECROUISSAGE DANS LES DEUX METAUX.

SECTION V-A - EFFETS D'IRRADIATION.

V-A-1 - CREATION DES DEFAUTS PONCTUELS.

Au cours des irradiations par des neutrons à 4 °K l'augmentation de la résistivité électrique avec le flux n'est pas linéaire mais présente une tendance à la saturation. Dans le cas du béryllium, où aucun recuit n'intervient au-dessous de 15 °K, celle-ci peut s'expliquer par une recombinaison athermique de paires de Frenkel due au recouvrement des volumes de recombinaison des défauts élémentaires. Dans le magnésium où l'on observe au contraire une restauration des défauts dès 4 °K, la tendance à la saturation est sans doute due à ce même processus, mais également à une recombinaison thermique de paires de Frenkel très proches. Il convient également de rappeler que pour les deux métaux étudiés le processus de la pointe thermique contribue à l'élimination de défauts au cours de l'irradiation.

Dans le magnésium l'augmentation de la résistivité électrique au cours de l'irradiation par des neutrons à 4 °K est indépendante de la pureté du métal. Ce résultat est en accord avec le fait que les collisions focalisées sont peu efficaces dans le magnésium. Il montre en outre que la recombinaison des paires proches à 4 °K n'est pas modifiée de façon sensible par la présence des impuretés. Bien que n'ayant pu faire aucune étude des effets d'irradiation dans le béryllium en fonction de la pureté, il est vraisemblable que ces résultats sont également valables pour le béryllium.

En utilisant des modèles théoriques simples (modèle des sphères dures pour les neutrons, modèle des chocs coulombiens pour les électrons), nous avons calculé les concentrations de défauts créés par irradiation.

Dans le cas du béryllium, les concentrations de défauts calculées théoriquement sont en assez bon accord avec les valeurs déterminées à partir des résultats d'énergie emmagasinée et de résistivité électrique si l'on admet que l'énergie de seuil de déplacement est de 25 eV, que l'énergie de formation d'une paire de Frenkel est de 5 eV et que la résistivité des paires est de

30 $\mu\text{cm}/\%$ at. environ. D'autres résultats expérimentaux confirment cette valeur relativement élevée de la résistivité électrique des paires dans le béryllium. Dans le cas du magnésium, l'accord est relativement bon entre le calcul théorique des concentrations de défauts et les déterminations expérimentales obtenues par résistivité électrique en supposant que l'augmentation de résistivité par % de paires de Frenkel est de l'ordre de la résistivité électrique mesurée à la température ambiante ($\Delta\rho_{\text{PF}} \approx 4,4 \mu\text{cm}/\%$ at.).

Il semble donc que la règle de LUCASSON et WALKER qui prévoit que la résistivité électrique de 1 % at. de paires de Frenkel est égale à la résistivité du matériau à la température ambiante n'est pas vérifiée pour le béryllium alors que l'accord est bon pour le magnésium.

V-A-2 - RESTAURATION DES DEFANTS.

Sur la figure 54 nous avons représenté les spectres de restauration du béryllium et du magnésium après irradiation à 4 °K ($\phi = 5.10^{16} \text{ n/cm}^2$, $E > 0,1 \text{ MeV}$) en utilisant pour coordonnée de température le rapport T/T_F (T_F : température de fusion en °K). Cette représentation fait apparaître plusieurs points intéressants :

- dans le béryllium, le premier stade de restauration attribué à la recombinaison de paires proches, commence à 15 °K, soit $1.10^{-2} T_F$, alors que dans le magnésium des défauts sont mobiles pendant l'irradiation à 4 °K, soit $5.10^{-3} T_F$. La recombinaison des paires proches se produit donc à température relativement plus élevée dans le béryllium. Ceci est peut-être dû au fait que dans le béryllium, le rayon ionique étant faible (Be : 0,30 Å , Mg : 0,65 Å), la distorsion autour d'un atome interstitiel est peu importante, ce qui retarde d'autant la recombinaison interstitiel-lacune.

- dans les deux métaux le domaine de température où l'on observe la migration des défauts lacunaires est voisin de $0,15 T_F$. Celle-ci s'effectue à $0,15 T_F$ (stade III_B) dans le magnésium et $0,16 T_F$ (fin du stade III) dans le béryllium. Les énergies de migration correspondantes sont 0,48 eV pour le magnésium et 0,80 eV pour le béryllium, valeurs en accord avec la règle empirique de THOMPSON [71] : $E_{\text{ml}} = 5.10^{-4} T_F$ en eV que suit l'énergie de mobilité des lacunes dans un grand nombre de métaux c.f.c. et c.c. On calcule en effet pour le magnésium $E_{\text{ml}} = 0,46 \text{ eV}$ et pour le béryllium $E_{\text{ml}} = 0,78 \text{ eV}$.

- dans le béryllium, la restauration est pratiquement terminée à la fin du stade III, attribuée à la disparition des défauts lacunaires ; en particulier on ne voit pratiquement pas d'amas de défauts à la température ambiante par microscopie électronique. Dans le magnésium au contraire, la restauration se poursuit au-delà du stade III. On observe un stade IV qui dépend fortement de la teneur en impuretés et un stade V, de faible amplitude, qui correspond à la dissociation d'amas de défauts (points noirs) observés à la température ambiante par microscopie électronique.

L'interprétation des stades de restauration a été faite pour les deux métaux en

utilisant les modèles classiques de restauration des défauts d'irradiation dans les métaux c.f.c. Dans le cas du modèle "interstitiel" nous n'avons envisagé l'existence que d'un seul type d'interstitiel, l'existence de l'interstitiel type "crowdion", liée à la possibilité d'obtenir des collisions focalisées, étant peu probable dans le béryllium et le magnésium. Nous avons montré que la restauration des défauts lacunaires se produit dans le stade III_B pour le magnésium et à la fin du stade III pour le béryllium. Par contre, dans aucun de ces deux métaux, nous n'avons observé de stade de restauration qui puisse être attribué, sans équivoque, à la migration des interstitiels. Cependant, pour le magnésium, les résultats expérimentaux semblent plus faciles à interpréter si l'on suppose que les atomes interstitiels migrent dans le stade III_A .

SECTION V-B - EFFETS D'ECROUISSAGE.

Au cours d'une traction à la température de l'azote liquide, la résistivité électrique du magnésium et du béryllium augmente de façon linéaire avec la déformation plastique pour des allongements de l'ordre de 1 %. Les augmentations de résistivité mesurées pour le magnésium et le béryllium à 77 °K sont de l'ordre de grandeur de celles observées dans d'autres métaux hexagonaux (Zr, Cd, Ti). Ces valeurs sont notablement supérieures à celles que l'on mesure dans les métaux c.f.c. Cette différence est due au moins en partie au fait que la contribution des dislocations à la résistivité électrique est relativement élevée dans les métaux hexagonaux (Zr, Ti, Be, Mg) si on les compare à celle admise pour les métaux c.f.c.

Au cours de la restauration des défauts créés par écrouissage, on observe successivement la disparition des défauts ponctuels, puis celle des gros amas et des dislocations. Dans le magnésium la disparition des dislocations intervient normalement dans le domaine de recristallisation. Dans le béryllium au contraire, on observe un réarrangement très important du réseau de dislocations à une température relativement éloignée du domaine de recristallisation. Ce comportement particulier du béryllium peut sans doute s'expliquer par le fait que les coefficients d'autodiffusion sont nettement plus grands dans le béryllium que dans les autres métaux, pour une même valeur du rapport T/T_F [72]. La diffusion est de 10^2 à 10^3 fois plus rapide dans le béryllium que dans le magnésium.

CONCLUSION.

Malgré l'intérêt nucléaire certain que pouvaient présenter le béryllium et le magnésium, l'étude des défauts ponctuels créés par irradiation à basse température dans ces deux métaux n'avait été que peu abordée avant notre étude. C'est dans le but d'apporter une contribution à l'amélioration de nos connaissances dans ce domaine que nous avons entrepris ce travail. Nous avons été ensuite logiquement amenés à étudier les défauts créés par écrouissage à basse température, des études de trempe étant faites par ailleurs dans le laboratoire.

Notre étude nous a permis d'apporter quelques renseignements intéressants, tant sur les mécanismes de création que sur la restauration des défauts, défauts lacunaires en particulier, dans le béryllium et le magnésium.

Nos résultats confirment le comportement souvent particulier du béryllium lié sans doute à quelques unes de ses propriétés exceptionnelles (faible masse atomique, faible rayon ionique, température de Debye élevée, coefficients d'autodiffusion élevés,.....). Le magnésium s'est révélé un matériau plus "classique" mais non moins intéressant à étudier.

L'interprétation complète des stades de restauration après irradiation est loin d'être résolue pour le béryllium et le magnésium, mais il en est de même des autres métaux. Il est certain d'ailleurs que pour mettre fin à la querelle des partisans du modèle "interstitiel" et de ceux du modèle "lacunaire" l'utilisation de méthodes expérimentales nouvelles est nécessaire (étude des effets des défauts sur la canalisation des particules chargées, observations au microscope électronique à très basse température...). Les méthodes actuelles (résistivité électrique, énergie emmagasinée, frottement intérieur...), quoique très riches, s'avèrent cependant insuffisantes pour permettre de résoudre définitivement et sans équivoque le problème de la migration des atomes interstitiels.

ANNEXE 1.

MODELE DES SPHERES DURES.

Dans la théorie des chocs élastiques l'énergie maximum transmise $E_{\max}$ par un neutron d'énergie E_0 à un atome de masse M est [73] :

$$E_{\max} = 4 \frac{M \times 1}{(M+1)^2} E_0$$

Dans le modèle des sphères dures la section efficace différentielle de transfert d'énergie au primaire est constante pour tout le spectre d'énergies transmises ($0 < E_p < E_{\max}$). En conséquence, l'énergie moyenne des atomes primaires est :

$$\bar{E}_p = \frac{E_{\max}}{2}$$

Pour qu'il y ait déplacement d'atomes par les neutrons il faut que l'énergie transmise soit supérieure à l'énergie de seuil E_d . La section efficace de déplacement σ_d est :

$$\sigma_d = \sigma_{\text{tot}} \left(1 - \frac{E_d}{E_{\max}} \right)$$

$$\sigma_d \neq \sigma_{\text{tot}}$$

σ_{tot} : section efficace totale de déviation.

Le libre parcours moyen d'un neutron est donné par :

$$L_d = \frac{1}{N \sigma_d}$$

N : nombre d'atomes/cm³ dans le réseau.

Les sections efficaces de déplacement dans le béryllium et le magnésium étant de l'ordre de quelques barns, les libres parcours moyens des neutrons rapides sont de quelques centimètres,

donc bien supérieurs aux dimensions de nos échantillons. On suppose donc que les neutrons créent au plus un primaire.

Les atomes primaires déplacés par les neutrons rapides ($E_0 > 1 \text{ MeV}$) dans le béryllium et le magnésium ont une énergie moyenne très grande (respectivement 180 keV et 77 keV). Les primaires possèdent une charge électrique et vont donc subir un ralentissement par ionisation. Aucun déplacement d'atomes n'intervient tant que l'énergie des primaires est supérieure à une énergie critique d'ionisation, E_c , du métal. Une règle empirique donne pour valeur de l'énergie critique d'ionisation la valeur de la masse atomique du métal exprimée en keV. L.T. CHADDERTON [17] relie l'énergie critique d'ionisation à la masse atomique et à l'énergie de Fermi E_F par l'expression :

$$E_c = \frac{1}{16} \frac{(M)}{m_e} E_F$$

avec :

$$E_F = (3 \pi^2 N)^{2/3} a_o^2 E_R$$

M : masse atomique

m_e : masse de l'électron

E_F : énergie de Fermi

N : nombre d'atomes / cm^3

a_o : rayon de l'orbite de Bohr ($= 0,53 \text{ \AA}$)

E_R : énergie de Rydberg ($= 13,6 \text{ eV}$).

Si E_c est supérieure à $\bar{E}_p$ on ne tient pas compte de l'ionisation et le nombre moyen d'atomes déplacés par un primaire, $\bar{v}$, est calculé selon la théorie simple des cascades élaborée par KINCHIN et PEASE. Celui-ci est égal à :

$$\bar{v} = \frac{\bar{E}_p}{2 E_d}$$

Si E_c est inférieur à $\bar{E}_p$, on calcule pour $\bar{v}$:

$$\bar{v} = \frac{E_c}{2 E_d} \left(1 - \frac{E_c}{2 E_{\max}} \right)$$

Le libre parcours moyen des atomes primaires est petit, et leur distance d'arrêt est de l'ordre de quelques centaines d'angstroems, distance très inférieure aux dimensions des échantillons.

Le nombre moyen de paires de Frenkel créées par un neutron ($N_{pF}/n/\text{cm}^2$) est :

$$N_{pF}/n/\text{cm}^2 = \sigma_d \cdot \bar{v} \cdot N$$

Les concentrations de paires de Frenkel créées par un flux ϕ de neutrons d'énergie E_0 est donc égal à :

$$c_{pF} = \phi \cdot \sigma_d \cdot \bar{v}$$

Application au cas du béryllium.

Cas d'une irradiation dans un flux intégré

$$\phi = 5 \cdot 10^{17} \text{ neutrons/cm}^2.$$

Les neutrons sont supposés tous d'énergie $E_0 = 1 \text{ MeV}$.

M	BERYLLIUM
	9
σ_d	$3,3 \cdot 10^{-24} \quad [40]$
N	$1,2 \cdot 10^{23} \text{ at/cm}^3$
$E_{\max}$	360 keV
$\bar{E}_p$	180 keV
E_c	9,2 keV
$\bar{v}$	184
$N_{pF}/n/\text{cm}^2$	73
c_{pF}	$3,05 \times 10^{-4}$

TABEAU XVI

Application au cas du magnésium.

Cas d'une irradiation dans un flux

$$\phi = 5 \cdot 10^{16} \text{ neutrons/cm}^2.$$

Les neutrons sont supposés être tous d'énergie $E_0 = 0,1 \text{ MeV}$.

M	MAGNESIUM
	24
σ_d	$5 \pm 0,5 \cdot 10^{-24}$ [40]
N	$0,043 \cdot 10^{24}$
$E_{\max}$	15,3 keV
$\bar{E}_p$	7,65 keV
E_c	12,2 keV
$\bar{\nu}$	144
$N_{pF}/n/cm^2$	32 (*)
c_{pF}	$3,6 \cdot 10^{-5}$

TABLEAU XVII

(*) Pour des neutrons d'énergie $E_o = 1$ MeV, on calcule $N_{pF}/n/cm^2 = 52$.

ANNEXE 2.

CREATION DE DEFAUTS PONCTUELS PAR LES NEUTRONS D'ENERGIE COMPRISE ENTRE 0,5 eV et 10^4 eV.

APPLICATION AU CAS DU BERYLLIUM.

D'après [39] on a pour un réacteur à eau légère du type Mélusine :

$$\frac{\phi (0,5 \text{ eV à } 10^4 \text{ eV})}{\phi (> 10^6 \text{ eV})} \neq 1$$

Nous pouvons écrire l'égalité des flux sous la forme :

$$\int_{0,5}^{10^4} N(E) dE \neq \phi_o$$

$N(E)$: fonction de répartition spectrale des neutrons.

$$\phi_o = \phi (E > 10^6 \text{ eV}).$$

Les neutrons d'énergie supérieure à 1 MeV ont la même efficacité pour la création des défauts ponctuels étant donné le ralentissement des primaires jusqu'à l'énergie critique d'ionisation $E_c = 9,2 \text{ keV}$. Le nombre moyen de déplacements créés par un neutron rapide ($E > 1 \text{ MeV}$) est de la forme (cf. Annexe 1) :

$$\bar{v} = \frac{E_c}{2 E_d} \left(1 - \frac{E_c}{2 E_{\max}} \right)$$

$$\bar{v} \neq \frac{E_c}{2 E_d}$$

La concentration de défauts créés par les neutrons rapides ($E > 1 \text{ MeV}$) est :

$$c_{pF} = \phi_o \sigma_d \bar{v} = \phi_o \frac{E_c}{2 E_d} \sigma_d$$

Avec :

$$E_c = 9,2 \text{ keV}$$

$$E_d = 25 \text{ eV}$$

$$\sigma_d = 3,3 \text{ barns [39].}$$

On obtient :

$$c_{pF} = 6,1 \cdot 10^{-26} \phi_o$$

D'après [39], la répartition spectrale des neutrons d'énergie comprise entre 0,5 eV et 10^4 eV varie en $\frac{1}{E}$. On peut écrire, C étant une constante :

$$\int_{0,5 \text{ eV}}^{10^4 \text{ eV}} \frac{C}{E} dE = \phi_o$$

En intégrant la fonction dans le domaine d'énergie considéré on obtient :

$$\begin{aligned} \frac{10^4 \text{ eV}}{0,5 \text{ eV}} \log E &= \frac{\phi_o}{C} \\ C &\neq \frac{\phi_o}{10} \end{aligned}$$

Pour un neutron d'énergie E comprise entre 0,5 eV et 10^4 eV, le nombre moyen de défauts créés est de la forme (cf. Annexe 1) :

$$\bar{v}(E) = \frac{4 M \times 1}{(M+1)^2} E \frac{1}{4 E_d}$$

La concentration de défauts créés par ces neutrons intermédiaires est égale à :

$$c_{pF} = \int_{125 \text{ eV}}^{10^4 \text{ eV}} N(E) \bar{v}(E) \sigma(E) dE$$

$$c_{pF} = \int_{125 \text{ eV}}^{10^4 \text{ eV}} \frac{\phi_o}{10 E} \frac{4 M}{(M+1)^2} E \frac{1}{4 E_d} \sigma(E) dE$$

La valeur de la borne inférieure de l'intégrale représente l'énergie minimale que doit posséder un neutron pour pouvoir créer un déplacement dans le béryllium.

$$\begin{aligned} \text{Avec} \quad M &= 9 \\ E_d &= 25 \text{ eV} \\ \sigma(E) &= 6 \text{ barns pour } 0,5 \text{ eV} < E < 10^4 \text{ eV} \quad [39] \end{aligned}$$

On obtient :

$$\underline{c_{pF} = 2,2 \cdot 10^{-27} \phi_o}$$

On peut comparer l'efficacité respective des deux flux intégrés de neutrons en effectuant le rapport des concentrations de défauts créés.

On a :

$$\frac{(c_{pF})_{E > 1 \text{ MeV}}}{(c_{pF})_{0,5 < E < 10^4 \text{ eV}}} \neq 28$$

La concentration de défauts créés par les neutrons d'énergie comprise entre 0,5 eV et 10^4 eV représente donc moins de 4 % de celle correspondant aux neutrons rapides ($E > 1 \text{ MeV}$).

ANNEXE 3.

MODELE DES CHOCS COULOMBIENS.

L'énergie maximum transmise par un électron relativiste d'énergie E_o à un atome de masse M est [74] :

$$E_{\max} = \frac{2 (E_o + 2 m_e c^2)}{M c^2} E_o$$

m_e : masse de l'électron au repos

c : vitesse de la lumière.

L'énergie moyenne des primaires ainsi créés est :

$$\bar{E}_p = \frac{E_{\max} \cdot E_d}{E_{\max} - E_d} \text{ Log } \frac{E_{\max}}{E_d}$$

L'énergie moyenne des atomes primaires créés par les électrons est très inférieure à l'énergie critique d'ionisation. Il n'y a donc pas lieu d'envisager le ralentissement des primaires par ionisation. Le nombre moyen $\bar{v}$ d'atomes déplacés par un primaire est :

$$\bar{v} = \frac{1}{2} \frac{\bar{E}_p}{E_d}$$

La section efficace totale de déplacement σ_d est donnée par :

$$\sigma_d = \frac{\pi b^2}{4} \left(\frac{E_{\max}}{E_d} - 1 \right)$$

$$b = \frac{2 Z e^2}{m_e v_o^2} \sqrt{1 - \frac{v_o^2}{c^2}}$$

e : charge de l'électron

v_o : vitesse des électrons

Z : numéro atomique.

Si on admet qu'un électron crée au plus un primaire dans les échantillons, la concentration en paires de Frenkel créées par un flux ϕ d'électrons d'énergie E_0 est :

$$c_{pF} = \phi \cdot \sigma_d \cdot \bar{v}$$

Le nombre de paires de Frenkel créées par un électron par cm^2 est :

$$N_{pF}/e^-/cm^2 = \sigma_d \cdot \bar{v} \cdot N$$

N : nombre d'atomes/ cm^3 .

Application au béryllium et au magnésium.

Cas d'une irradiation théorique par un flux intégré $\phi = 1.10^{18}$ électrons/ cm^2 d'énergie $E_0 = 3$ MeV.

	Béryllium	Magnésium
M	9	24
Z	4	12
N	$1,2.10^{23}$ at/ cm^3	$0,43.10^{23}$ at/ cm^3
E_{max}	2 870 eV	1 076 eV
E_p	119 eV	94 eV
$\bar{v}$	$\neq 2,4$	$\neq 2$
σ_d	$11,1.10^{-24}$ cm^2	41.10^{-24} cm^2
$N_{pF}/e^-/cm^2$	3,2	3,5
c_{pF}	$2,7.10^{-5}$	$8,2.10^{-5}$

TABLEAU XVIII

ANNEXE 4.

CALCUL DES ENERGIES CRITIQUES DE FOCALISATION.

En utilisant le modèle des sphères dures on montre [75] que, pour qu'il y ait des collisions focalisées dans la direction (h,k,l), le paramètre de focalisation

$$f = \frac{D_{(h,k,l)}}{2 R} - 1$$

doit être inférieur à 1. $D_{(h,k,l)}$ est la distance interatomique dans la direction (h,k,l). R est le rayon de sphère dure ou rayon apparent des atomes (R est fonction de l'énergie de l'atome primaire et il augmente lorsque l'énergie des primaires diminue). Il existe une énergie critique $E_f^{(h,k,l)}$ au-dessous de laquelle R est assez élevé pour que la condition de focalisation soit remplie.

Le problème de la propagation des collisions focalisées peut être traité en utilisant un potentiel de BORN-MAYER, $V(r) = A \exp(-b r)$, pour rendre compte de l'interaction élastique au cours des chocs. Ce potentiel est valable pour l'étude des chocs mettant en jeu des faibles énergies. Dans l'approximation des sphères dures, la distance minimum d'approche r_m° , pour une énergie du primaire E_p est :

$$r_m^\circ = 2 R$$

Dans le cas d'un choc de plein fouet entre deux atomes identiques, on montre que :

$$V(r_m^\circ) = \frac{E_p}{2}$$

La condition limite de focalisation correspond à un rayon de sphère dure égal à :

$$R = \frac{D_{(h,k,l)}}{4}$$

D'où

$$r_m^\circ = \frac{D_{(h,k,l)}}{2}$$

On calcule l'énergie critique de focalisation dans la direction (h,k,l) par :

$$E_f(h,k,l) = 2 V \left(\frac{D(h,k,l)}{2} \right)$$

Application au béryllium et au magnésium.

ABRAHAMSON [76] a calculé pour de nombreux métaux les paramètres A et b de l'expression du potentiel interatomique de BORN-MAYER. Il donne également les valeurs limites de r pour l'application de ce potentiel. Les valeurs déterminées par ABRAHAMSON pour le béryllium et le magnésium sont données dans le tableau XIX :

Métal	A (eV)	b (Å) ⁻¹	r _{inf.} (Å)	r _{sup.} (Å)	r _m ^o = $\frac{D_{<11\bar{2}0>}}{2}$ (Å)
Be	699,34	3,89	0,794	1,852	1,14
Mg	3 829,0	3,698	0,794	2,116	1,605

TABLEAU XIX

On voit que la distance minimum d'approche pour l'énergie critique de focalisation est comprise entre les valeurs limites d'application du potentiel de BORN-MAYER.

Les énergies critiques de focalisation que l'on calcule ainsi sont respectivement :

- pour le béryllium

$$E_f^{<11\bar{2}0>} = 16,6 \text{ eV}$$

- pour le magnésium

$$E_f^{<11\bar{2}0>} = 20,2 \text{ eV.}$$

ANNEXE 5.

MODELES CLASSIQUES POUR L'INTERPRETATION DE LA RESTAURATION DES DEFAUTS PONCTUELS CREES PAR IRRADIATION DANS LES METAUX CFC.

La restauration des défauts ponctuels créés par irradiation se fait généralement en cinq stades.

Pour l'interprétation de ces différents stades, on utilise l'un ou l'autre des deux modèles proposés par CORBETT, SMITH, WALKER d'une part et MEECHAN, SOSIN, BRINKMAN, SEEGER d'autre part. Ces deux modèles ont été proposés par leurs auteurs pour rendre compte de la restauration des défauts d'irradiation dans les métaux de structure cubique à faces centrées, en particulier dans le cuivre.

Nous avons résumé dans le tableau XX les interprétations des différents stades pour chacun des deux modèles, généralement appelés modèle lacunaire (CORBETT,...) et modèle interstitiel (MEECHAN, ...).

STADES	Modèle lacunaire [77], [74]	Modèle interstitiel [78], [79]
I	Recombinaison des paires proches Migration des interstitiels libres (I_E)	Recombinaison des paires proches Migration des crowdions (I_E) (*)
II	Dépiégeage des interstitiels	Dépiégeage des crowdions et des interstitiels de paires proches.
III	Dépiégeage des interstitiels ou migration des bilacunes Migration des lacunes libres	Migration des interstitiels libres
IV	Dépiégeage des lacunes ou migration des couples lacune-impureté	Migration des lacunes libres Dépiégeage des lacunes
V	Disparition des amas de défauts Autodiffusion	Disparition des amas de défauts Autodiffusion.

TABLEAU XX

(*) Dans le cas de nos discussions, nous n'envisageons pas l'existence de l'interstitiel de type crowdion. En effet, celui-ci est lié à l'existence des collisions focalisées dans les deux métaux étudiés. Nous avons vu par ailleurs (Annexe 4) que celles-ci étaient improbables dans le béryllium et dans le magnésium.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.

- [1] MAIRY C., HILLAIRET J., SCHUMACHER D.
Acta Met., 1967, 15, 7, p. 1258-1261
- [2] MAIRY C.
Non publié - C.E.N. GRENOBLE, 1964
- [3] HILLAIRET J., MAIRY C., ESPINASSE J., LEVY V.
A paraître dans Acta Met. 1969
- [4] LEVY V., LESPINASSE J., MAIRY C., HILLAIRET J.
Rapport C.E.A., R 3784 , 1969
- [5] DUPOUY J.M., POIRIER J.P.
Déformation plastique des hexagonaux (Ecole d'été sur la déformation plastique des métaux et alliages - Nancy - Pont-à-Mousson, 1967).
- [6] BLEWITT T.H., COLTMAN R.R., HOLMES D.K., NOGGLE T.S., REDMAN J.K.
ORNL Rapport 2614, 1956
- [7] BEEVERS C.J.
Acta Met. 1963, 11, 1029
- [8] LALLY J.S., PARTRIDGE P.G.
Phil Mag., 1966, 13, 9
- [9] O'NEAL T.M., CHAPLIN R.L.
Phys. Letters, 1968, 26,A, 453
- [10] O'NEAL T.H., CHAPLIN R.L.
Bull. Amer. Phys. Soc., 1968, 13, 254

- [11] SHARP J.V., MITCHELL A., CHRISTIAN J.W.
Acta Met., 1965, 13, 965
- [12] MONTARIOL F., CATTEAU J.P., BOUCHERON C., VANDERSCHAEGHE A.
C.R. Acad. Sci., 1965, 261, 3605
- [13] LUCASSON P.G., WALKER R.M.
Phys. Rev., 1962, 127, 485
- [14] VON JAN R.
Phys. Stat. Sol., 1966, 17, 361
- [15] BRINKMAN J.A.
Amer. Journal of Phys., 1956, 24, 246
- [16] GENTHON J.P.
Rapport DEP/SPE/67/288 - C.E.N. SACLAY, 1967
- [17] CHADDERTON L.T.
Radiation Damage in Crystals (Methuen and Co, London, 1965
- [18] DROULERS Y., PLEYBER G., CARTERET Y., LUCAS R., BAREAU J.
J. Nuclear Mat., 1967, 21, 337
- [19] HICKMAN B.S., STEVENS G.T.
The effect of neutron irradiation on beryllium metal -
A.A.E.C. Research Establishment Lucas Heights.
- [20] BILLINGTON J.S.
Radiation damage in solids (Pinceton University Press), 1961
- [21] CALKINS V.P., THERINGTON E.
Nuclear Engineering Handbook - Mc Graw-Hill - England, 1958
- [22] PISSAVY J.C.
Thèse Paris, 1967
- [23] BRAAG V.H., KLEEMAN R.
Phil. Mag., 1905, 10, 6, 318
- [24] ARON N.A., HOFFMANN B.C., WILLIAMS F.C.
AECU Rapport 663

- [25] VAN BUEREN M.G.
Philips Res. Rep., 1957, 12, 1, 190
- [26] LUCASSON P., WALKER R.M.
Phys. Rev., 1962, 127, 1130
- [27] VAN TORNE L.I.
Phys. Stat. Sol., 1966, 18, 737
- [28] REALE C.
Phys. Letters, 1962, 2, 268
- [29] CORCIOVEI A., BABCENCO A.
Phys. Stat. Sol., 1964, 4, 587
- [30] DOLL R., MEISSNER H., RIEHL N., SCHILLING H., SCHMEISSNER H.
Z. Angew. Phys., 1964, 17, 321
- [31] BURGER G., ISEBECK K., VOLKL J., SCHILLING W., WENZL H.
Z. Angew. Phys., 1967, 22, 452
- [32] VAN DEN BEUKEL A.
Acta Met., 1963, 11, 97
- [33] BONJOUR E., PIERRE J., AGAGLIATE S., BERTRAND P., FAIVRE J.,
LAGNIER R.
Rapport C.E.A. R 3181, 1967
- [34] HILLAIRET J., TRABUT L.
A paraître
- [35] DELAPLACE J., HILLAIRET J.
Conf. Int. sur la métallurgie du béryllium - Grenoble - Presses Universitaires
de France, p. 213, 1966
- [36] QUERE Y.
Les défauts ponctuels dans les métaux - Masson, Paris, 1967
- [37] BURGER G., MEISSNER H., SCHILLING W.
Phys. Stat. Sol., 1964, 4, 281

- [38] BLEWITT T.H., HORAK J.A., LUCAS M.W.
Rapport américain TID, 1966, 4005
- [39] DROULERS Y., MEUNIER C.
Rapport C.E.A. R. 2536, 1964
- [40] HUGHES D.J., HARVEY J.A.
Neutron Cross Sections (Mc Graw-Hill Book Company, Inc - New York - Toronto -
London , 1955)
- [41] VON JAN R.
Phys. Stat. Sol., 1965, 8, 331
- [42] RUHLE M.
Phys. Stat. Sol., 1967, 19, 279
- [43] COLTMAN R.R., KLABUNDE C.E., REDMAN J.K.
Phys. Rev., 1967, 156, 715
- [44] CORBETT J.W., SMITH R.B., WALKER R.M.
Phys. Rev., 1968, 14, 1452 -
Phys. Rev., 1958, 114, 1460
- [45] COLTMAN R.R., KLABUNDE C.E., REDMAN J.K.
Phys. Rev., 1967, 159, 521
- [46] SOSIN A., GARR K.R.
Phys. Rev., 1967, 161, 664
- [47] PERETTO P., ODDOU J.L., MINIER-CASSAYRE C., DAUTREPPE D., MOSER P.
Phys. Stat. Sol., 1966, 16, 281
- [48] SCHUMACHER D., NICOUD J.C., DELAPLACE J., HILLAIRET J.
Phys. Letters, 1967, 25.A, 610
- [49] SOSIN A., RACHAL L.M.
Phys. Rev., 1963, 130, 2238
- [50] CERESARA S., FEDERIGHI T., PIERAGOSTINI F.
Phys. Stat. Sol., 1965, 11, 779

- [51] FROIS C., DIMITROV O.
C.R. Acad. Sci., 1966, C.263, 1496
- [52] FROIS C., DIMITROV O.
C.R. Acad. Sci., 1967, C.264, 1923
- [53] GARR K.R., SOSIN A.
Phys. Rev., 1967, 162, 669
- [54] DUPOUY J.M., MATHIE J. ADDA Y.
Journées Métallurgiques d'automne, Paris, 1964
- [55] ISEBECK K., RAU F., SCHILLING W., SONNENBERG K., TISCHER P., WENZL H.
Phys. Stat. Sol., 1966, 17, 259
- [56] SWANSON M.L.
Canad. Journal of Physics, 1966, 44, 3241
- [57] BREHM C., LEHR P.
Mem. Sc. Rev. Met., 1968, LXV 275
- [58] SIMON J.P.
A publier
- [59] BASINSKI Z.X., DUGDALE J.S., HOWIE A.
Phil. Mag., 1963, 8, 1989
- [60] OKUDA S., TAKAMURA S.
Phys. Letters, 1967, 25.A, 239
- [61] DE MORTON M.E.
Trans. Met. Soc. AIME, 1961, 221, 395
- [62] ROBINSON P.M., RICHARDS P.N.
Phil. Mag., 1965, 11, 407
- [63] SNEAD C.L., SHEARIN P.E.
Phys. Rev., 1965, 140, A.1781
- [64] NIHOUL J.
Phys. Stat.Sol. 1963, 3, 2061

- [65] NIHOUL J. , STALS L.
Rapport BLG 424, 1967
- [66] SHEWMON P.G.
Trans. AIME 206, 1956, 918
- [67] FROIS C. , DIMITROV O.
C.R. Acad. Sci. , 1965, 260, 6883
- [68] CERESARA S. , FEDERIGHI T. , PIERAGOSTINI F.
Phys. Stat. Sol. , 1965, 11, 779
- [69] TOWNSEND J.R. , DI CARLO J.A. , NIELSEN R.L. , STABELL D.
Acta Met. , 1969, 17, 425
- [70] DIECKAMP H. , SOSIN A.
Journal Appl. Phys. , 1956, 27, 1416
- [71] THOMPSON M.W.
Phil. Mag. , 1960, 5, 278
- [72] DUPOUY J.M. , MATHIE J. , ADDA Y.
Mem. Sc. Rev. Met. , 1966, LXIII, 5, 481
- [73] DAMASK A.C. , DIENES G.J.
Point Defects in Metals - (Gordon and Breach Sciences Publishers - New York - 1963)
- [74] CORBETT J.W.
Electron Radiation Damage in Semi-conductors and Metals (Academic Press - New York - London, 1966)
- [75] THOMPSON M.W.
dans The Interaction of Radiation with Solids (North Holland Publishing Co - Amsterdam - 1964)
- [76] ABRAHAMSON A.
Phys. Rev. , 1969, 178, 76
- [77] CORBETT J.W. , SMITH R.B. , WALKER R.M.
Phys. Rev. , 1959, 114, 1452

- [78] MEECHAN G. J., SOSIN A., BRINKMAN J. A.
Phys. Rev., 1960, 120, 411
- [79] SEEGER A.
Symposium on radiation damage - I.A.E.A. Venise, 1962.

Manuscrit reçu le 17 novembre 1970

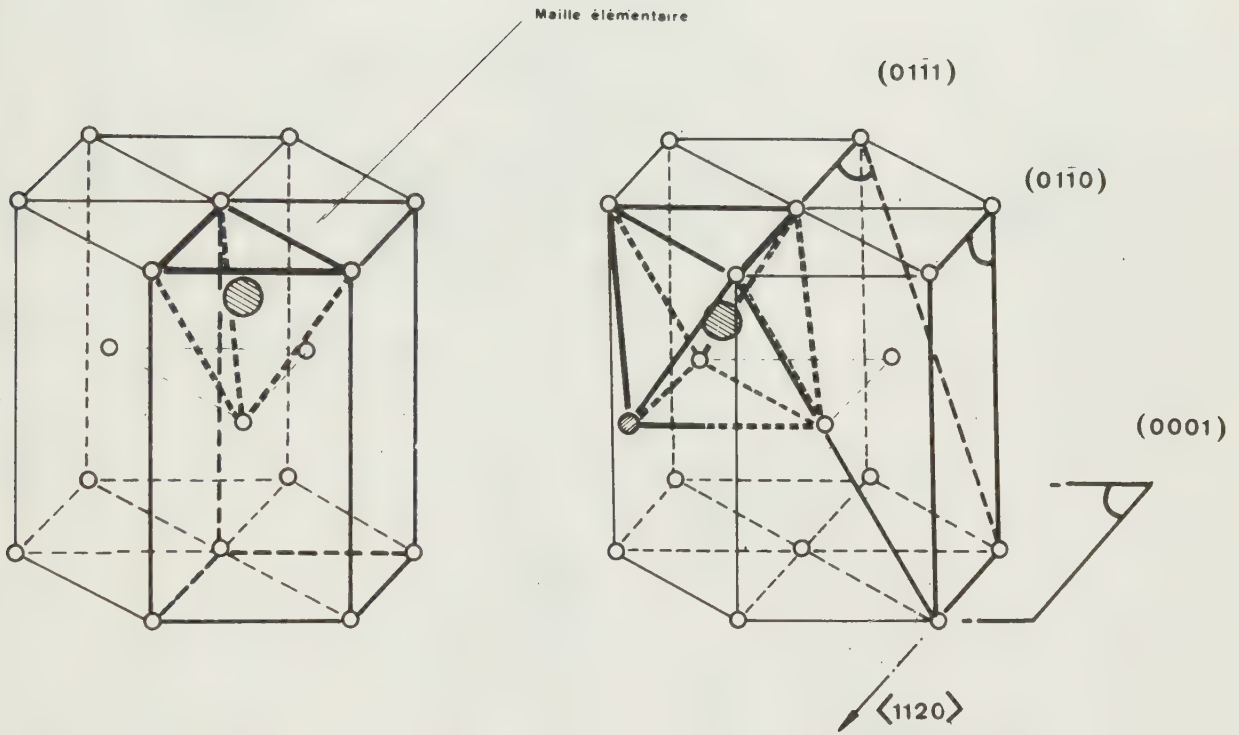


FIG. 1 - Réseau hexagonal compact

Maille élémentaire

Sites tétraédrique et octaédrique de l'interstitiel

Systèmes de glissement.

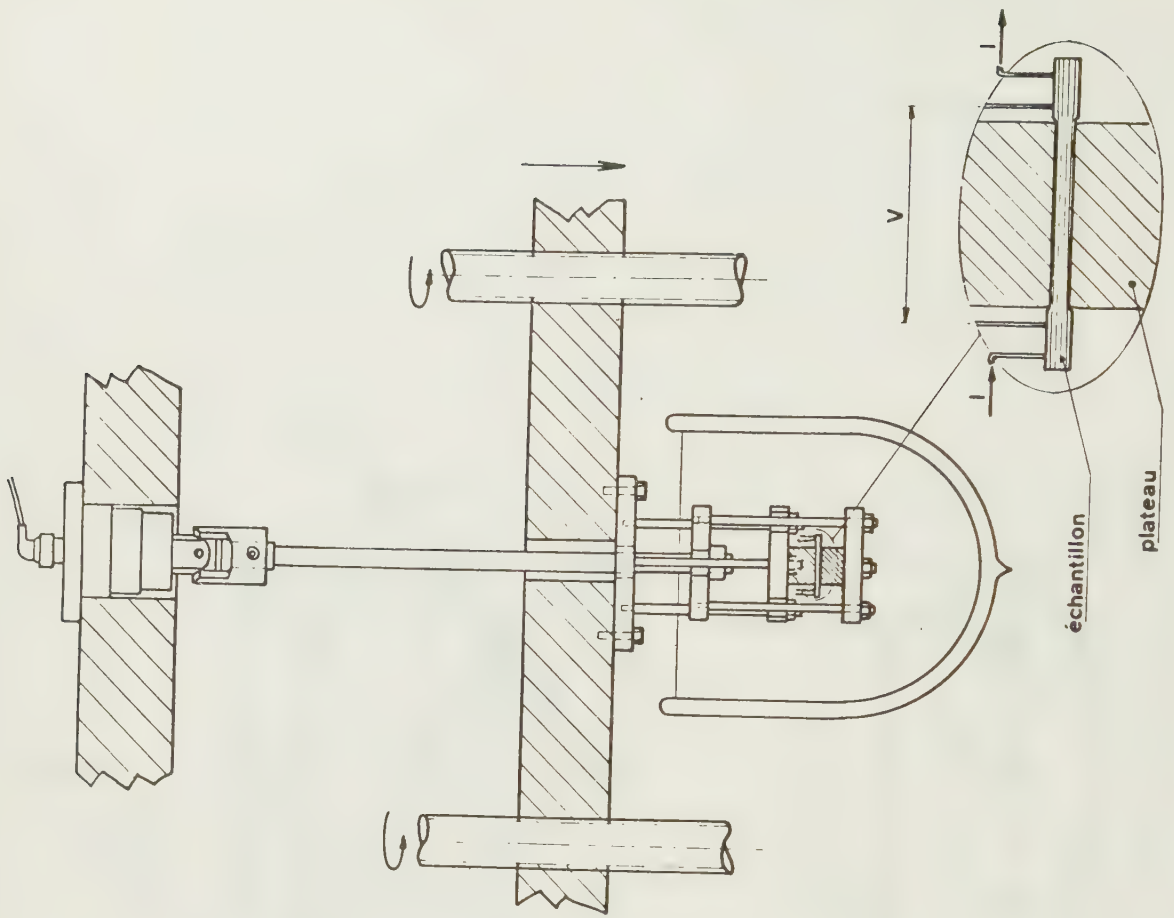


FIG. 5 - Dispositif d'écroutissage par compression à 77 °K

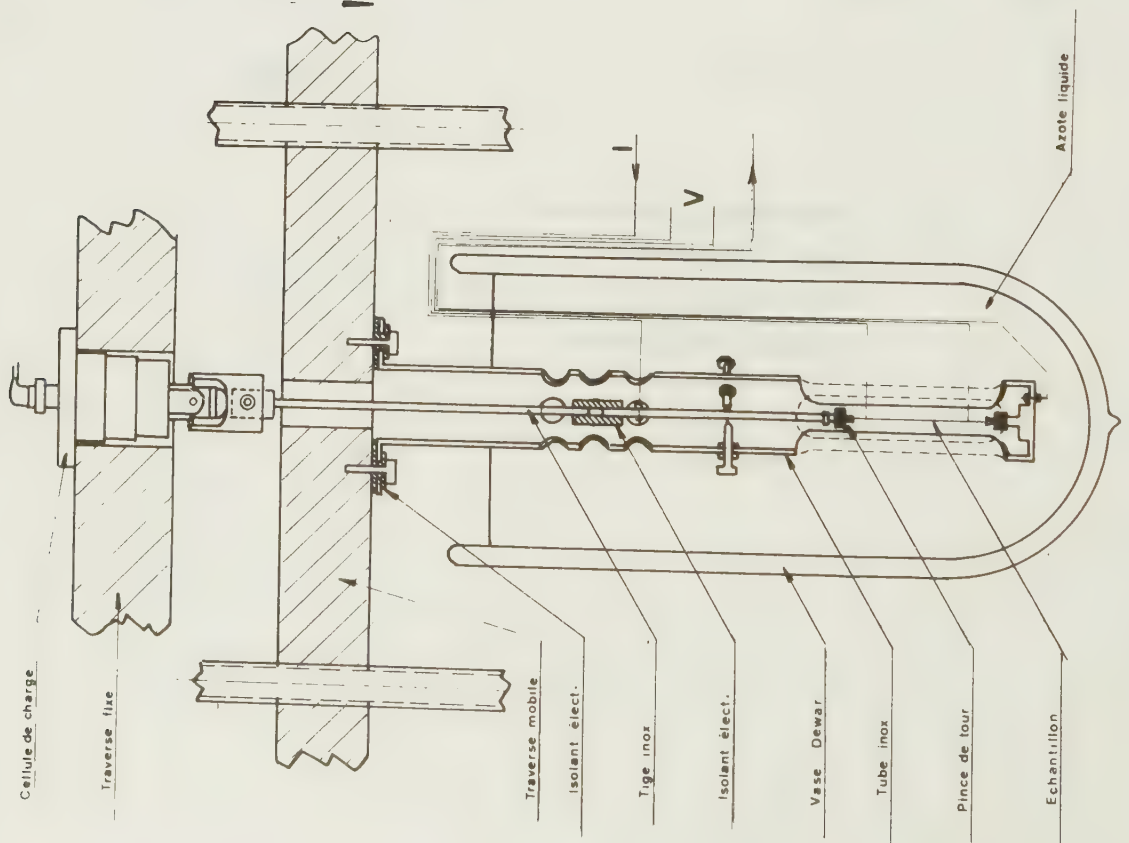
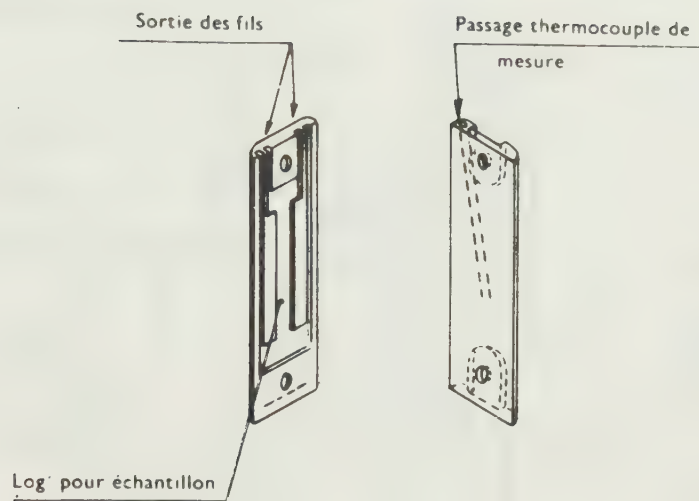


FIG. 4 - Dispositif d'écroutissage par traction à 77 °K



PORTE-ECHANTILLON

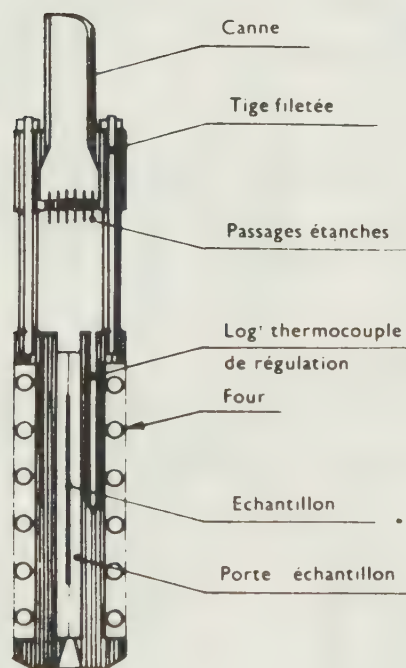


FIG. 6 - Porte-échantillon et four de recuit.

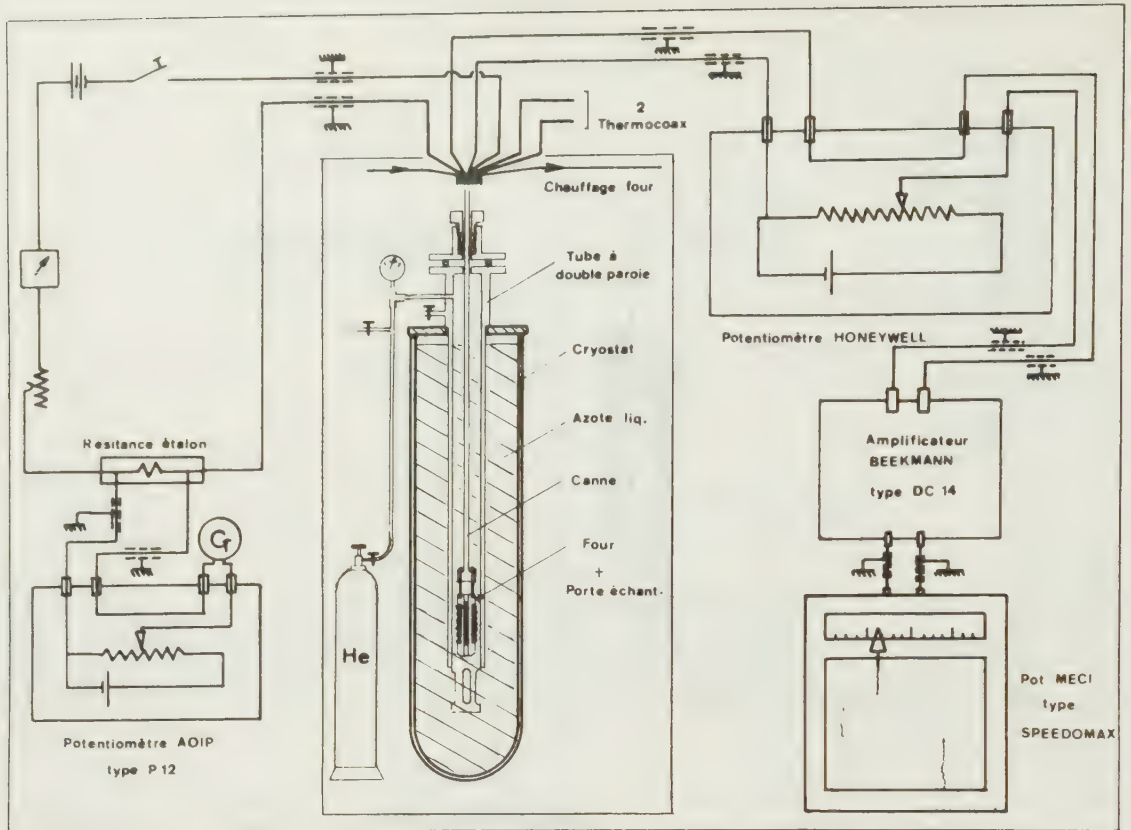


FIG. 10 - Cryostat utilisé pour les recuits effectués au-dessus de 77 °K
Méthode d'opposition.

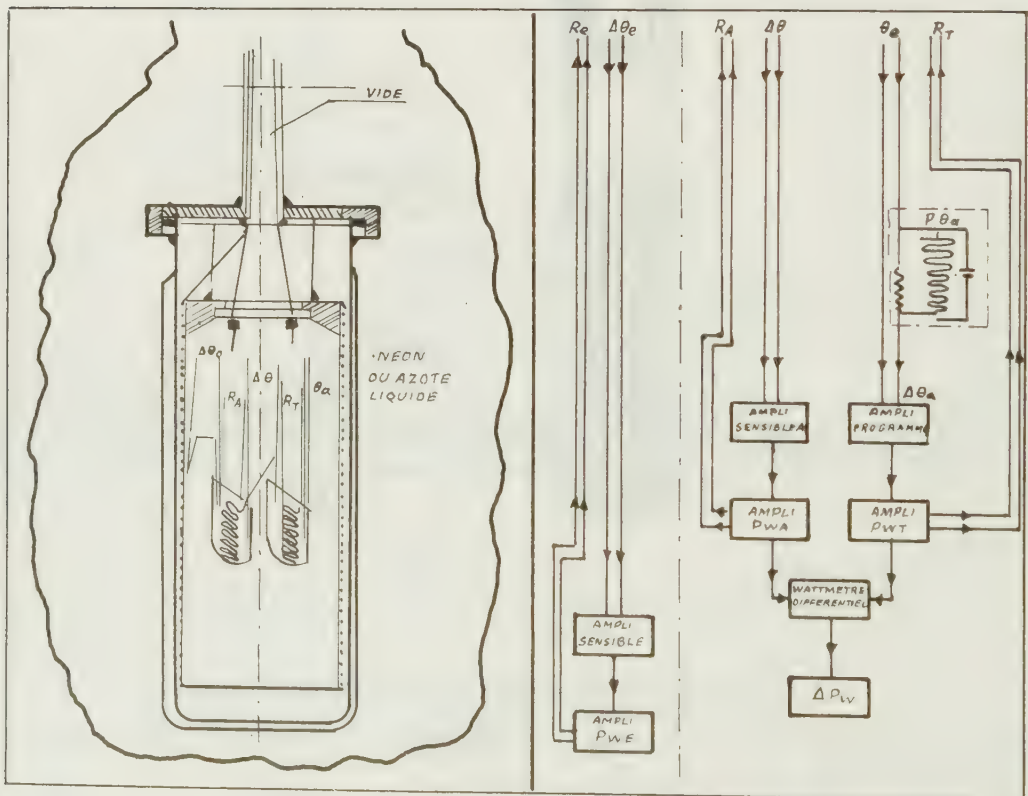


FIG. 11 - Dispositif de mesure de l'énergie emmagasinée (calorimètre C.P.C. 600)

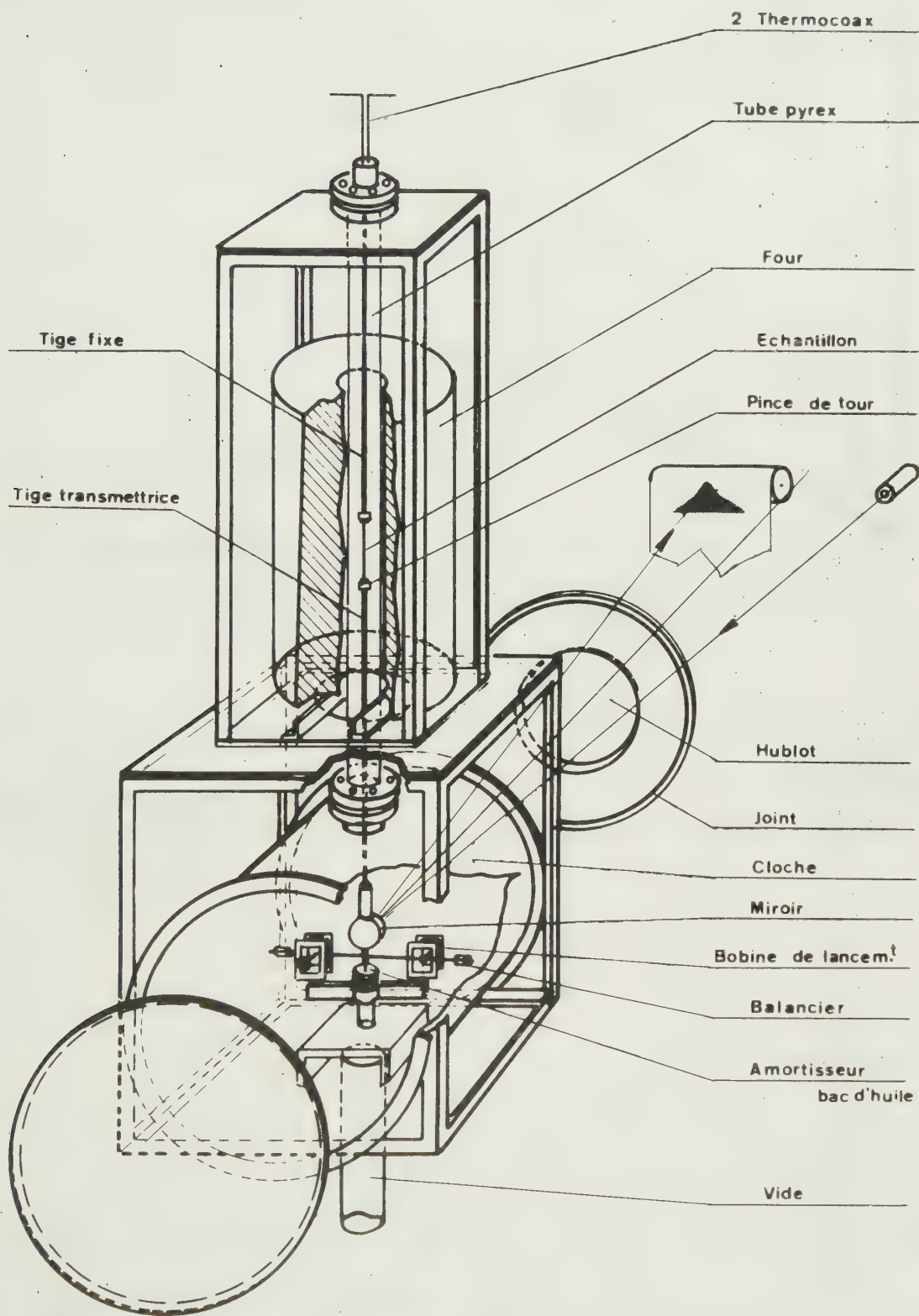


FIG. 14 - Pendule de KE.

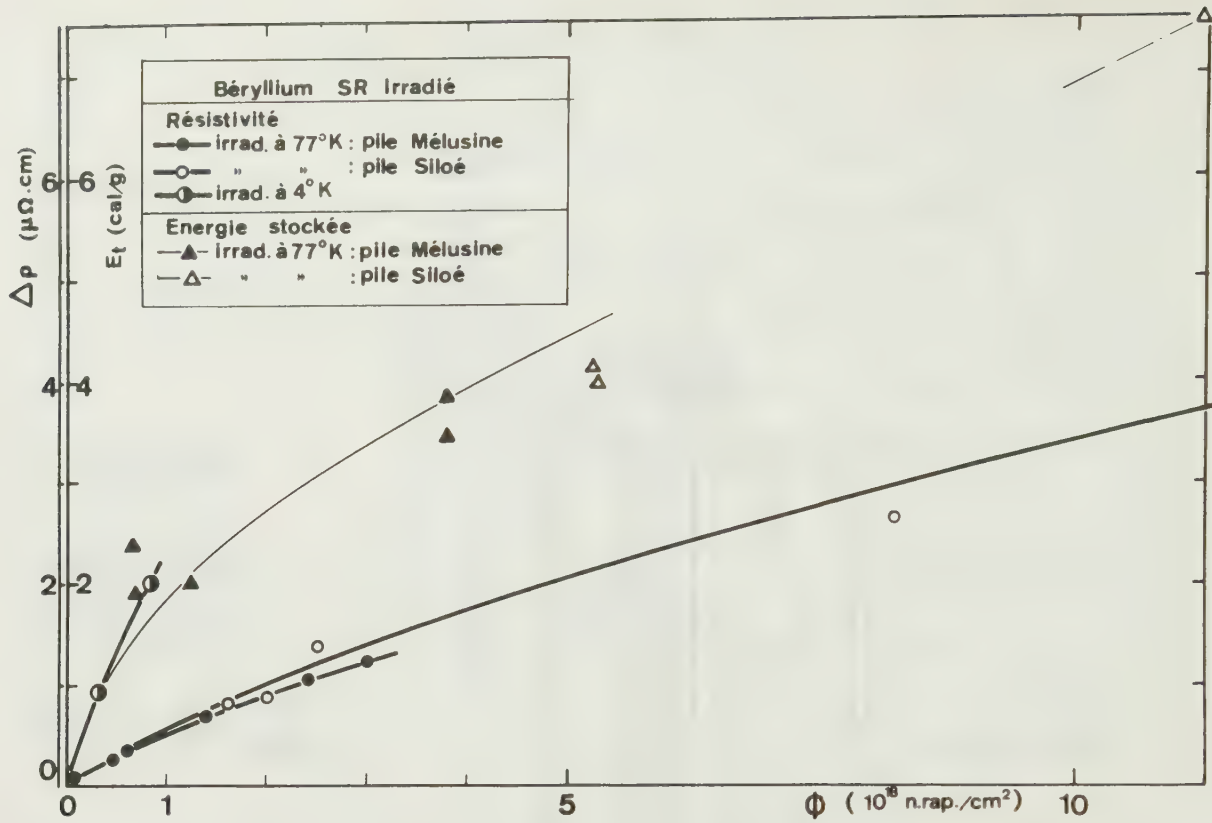


FIG. 15 - Augmentation de la résistivité électrique et énergie totale emmagasinée en fonction du flux de neutrons.

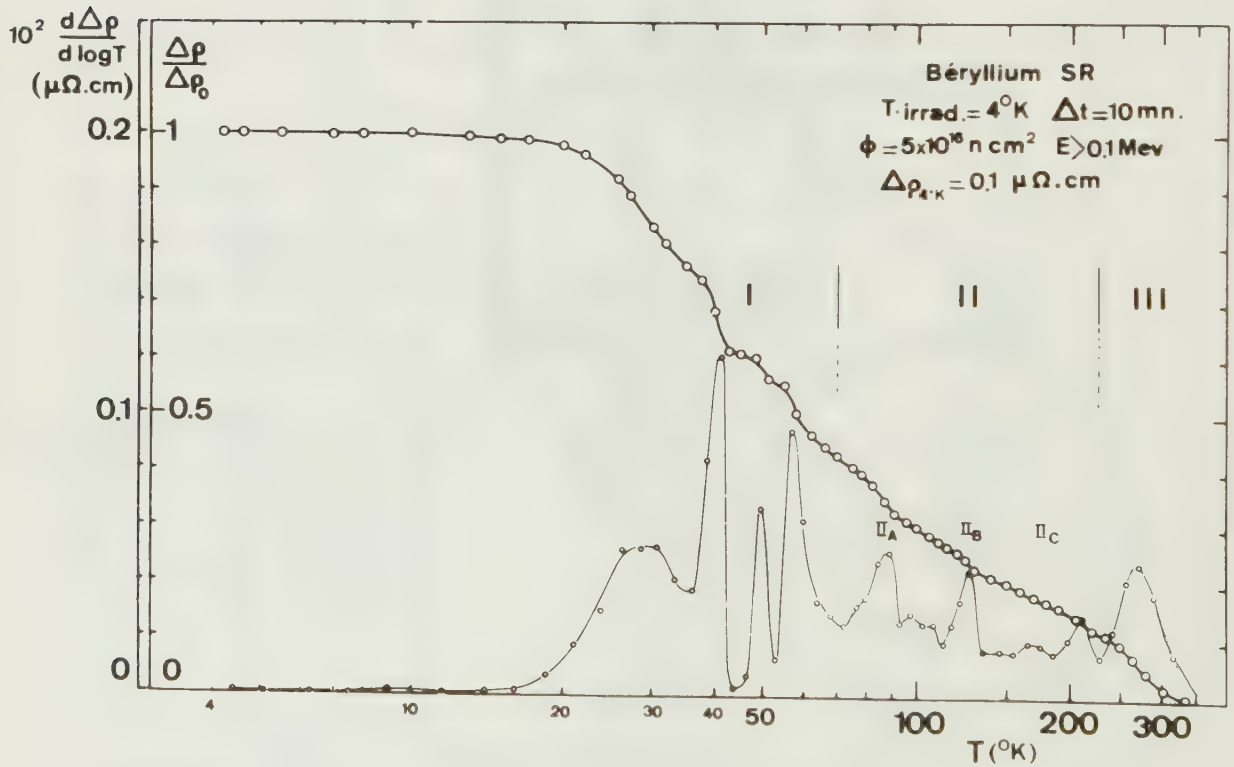


FIG. 16 - Restauration de la résistivité électrique après irradiation par des neutrons à 4 °K. Courbe normée de recuits isochrones et courbe dérivée ($\Delta\rho_0 = \Delta\rho_{4^{\circ}\text{K}}$).

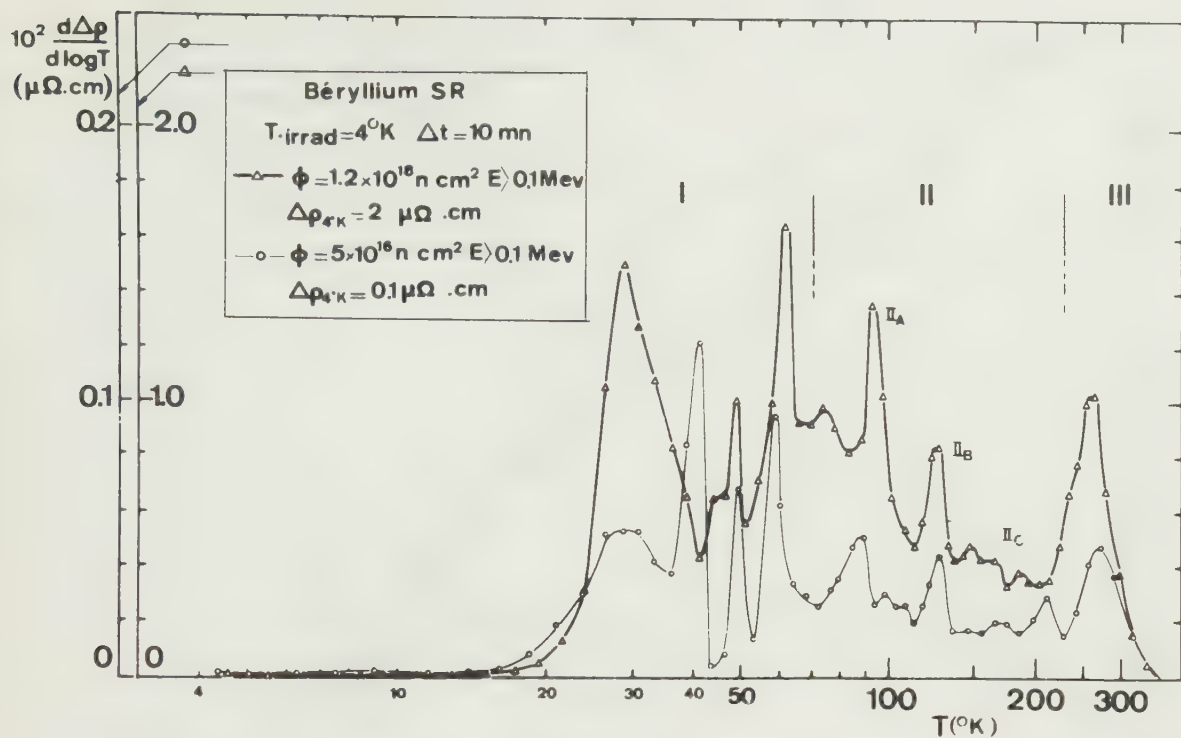


FIG. 17 - Restauration de la résistivité électrique après irradiation par des neutrons à 4 °K. Courbes dérivées de recuits isochrones obtenues pour deux flux intégrés de neutrons.

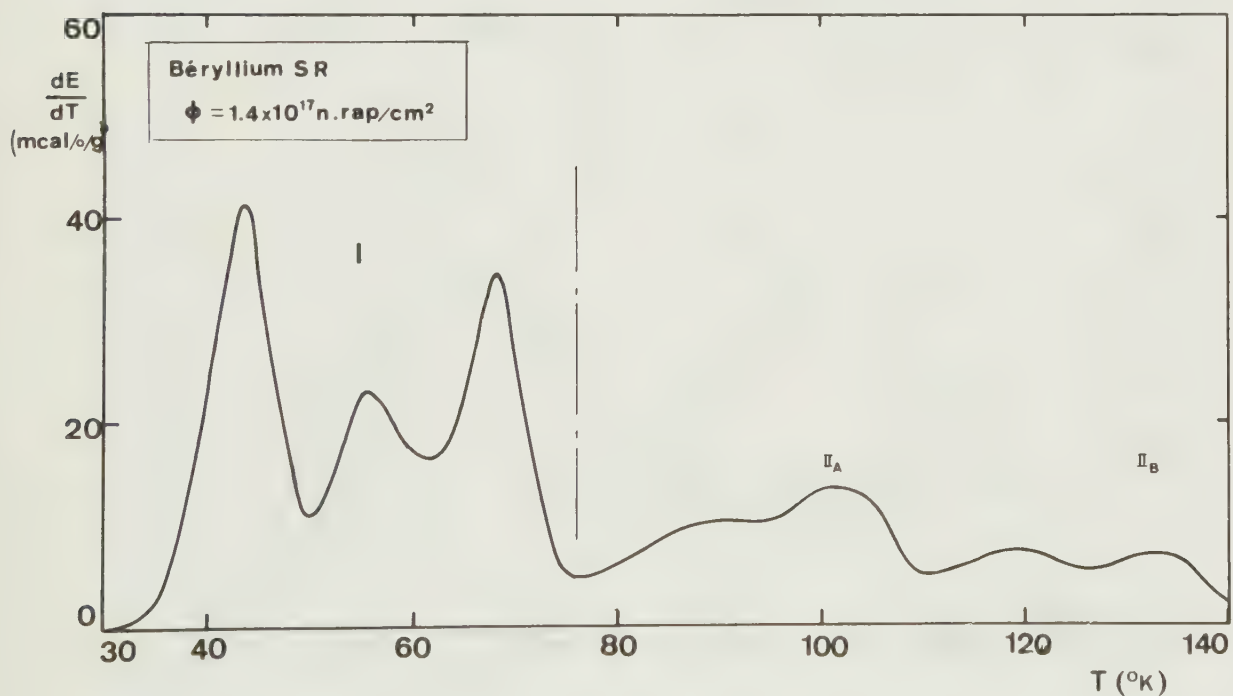


FIG. 18 - Energie libérée au cours du recuit d'un échantillon irradié à 27 °K par des neutrons.

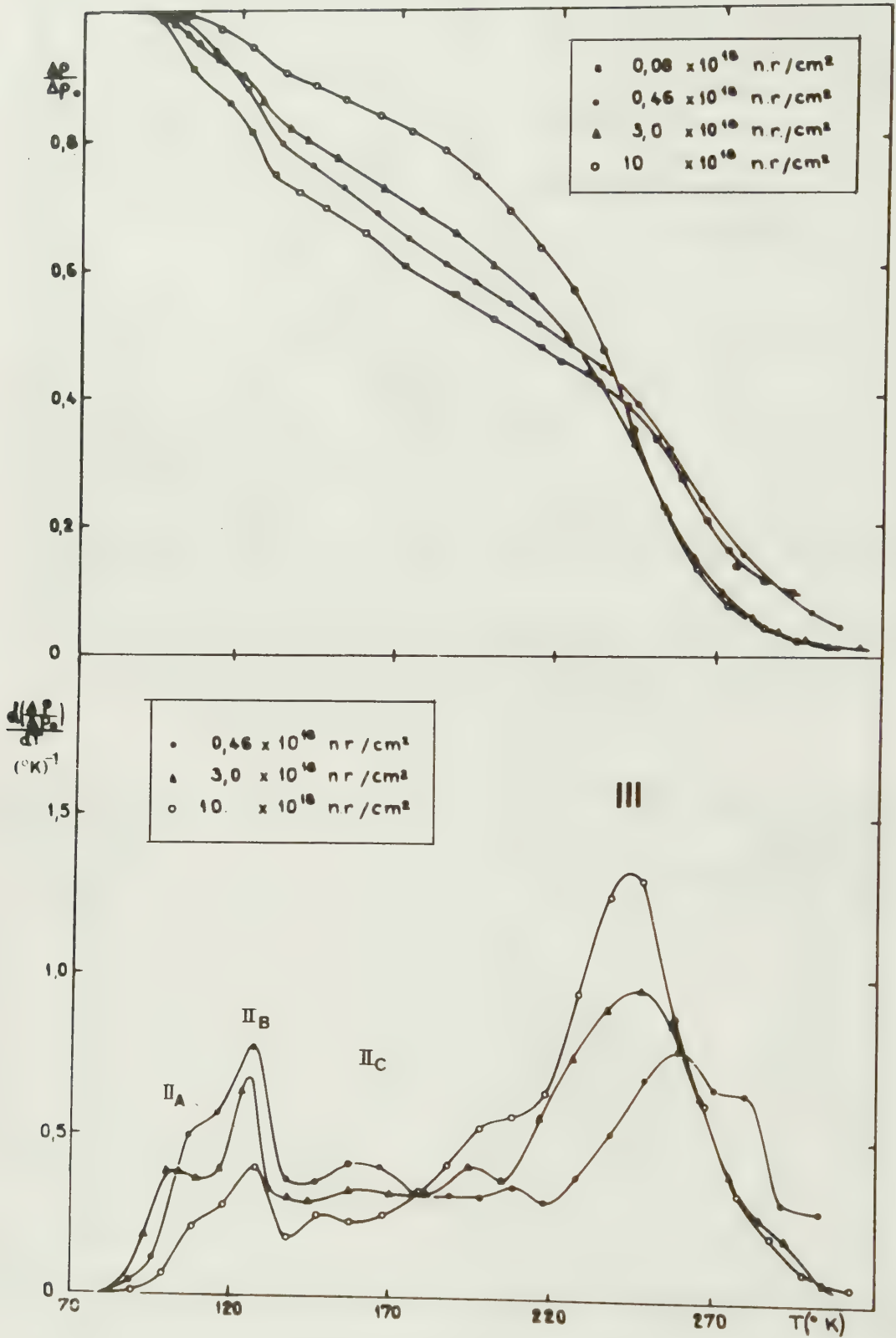


FIG. 19 - Restauration de la résistivité électrique d'échantillons de béryllium irradiés par des neutrons à 77 °K. Courbes normées de recuits isochrones et courbes dérivées correspondantes ($\Delta\rho_0 = \Delta\rho_{77\text{ °K}}$)

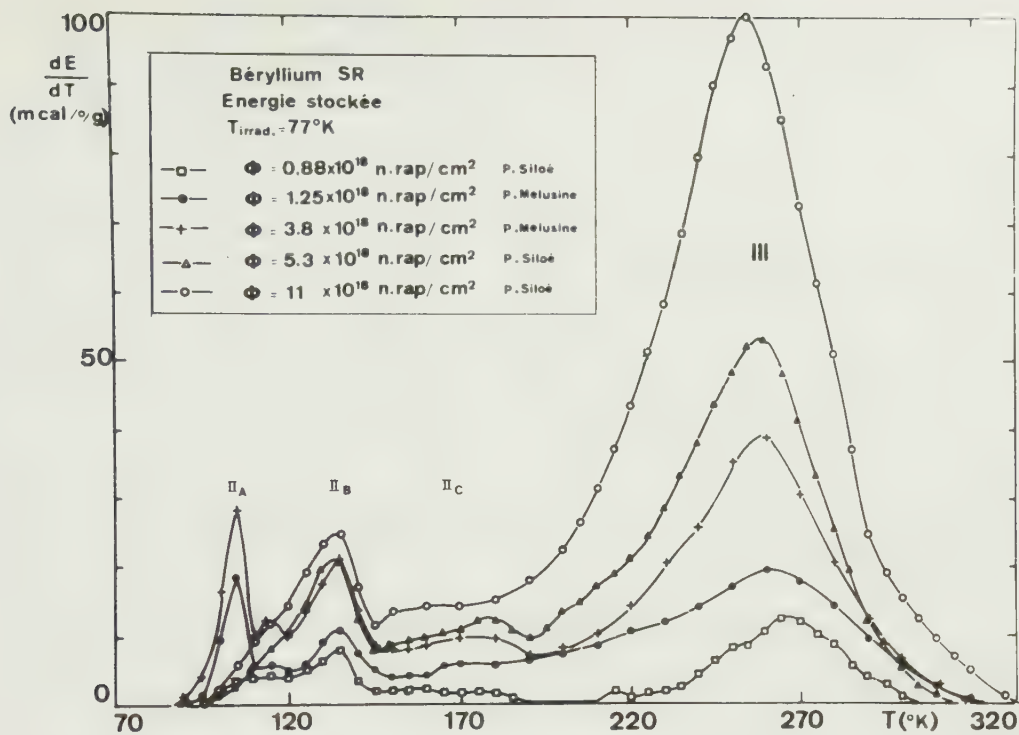


FIG. 20 - Spectres d'énergie libérée au cours du recuit d'échantillons irradiés par des neutrons à 77 °K (chauffage linéaire : 2,5 °/minute).

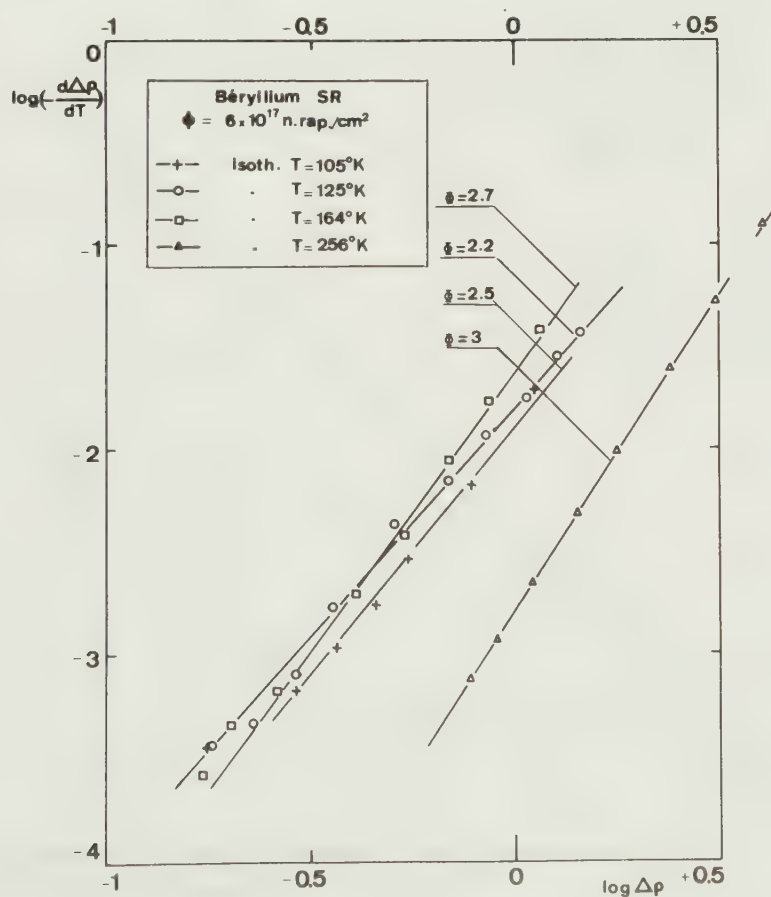


FIG. 21 - Ordres apparents des cinétiques effectuées à différentes températures du stade II (105, 125, 164 °K) et du stade III (256 °K).

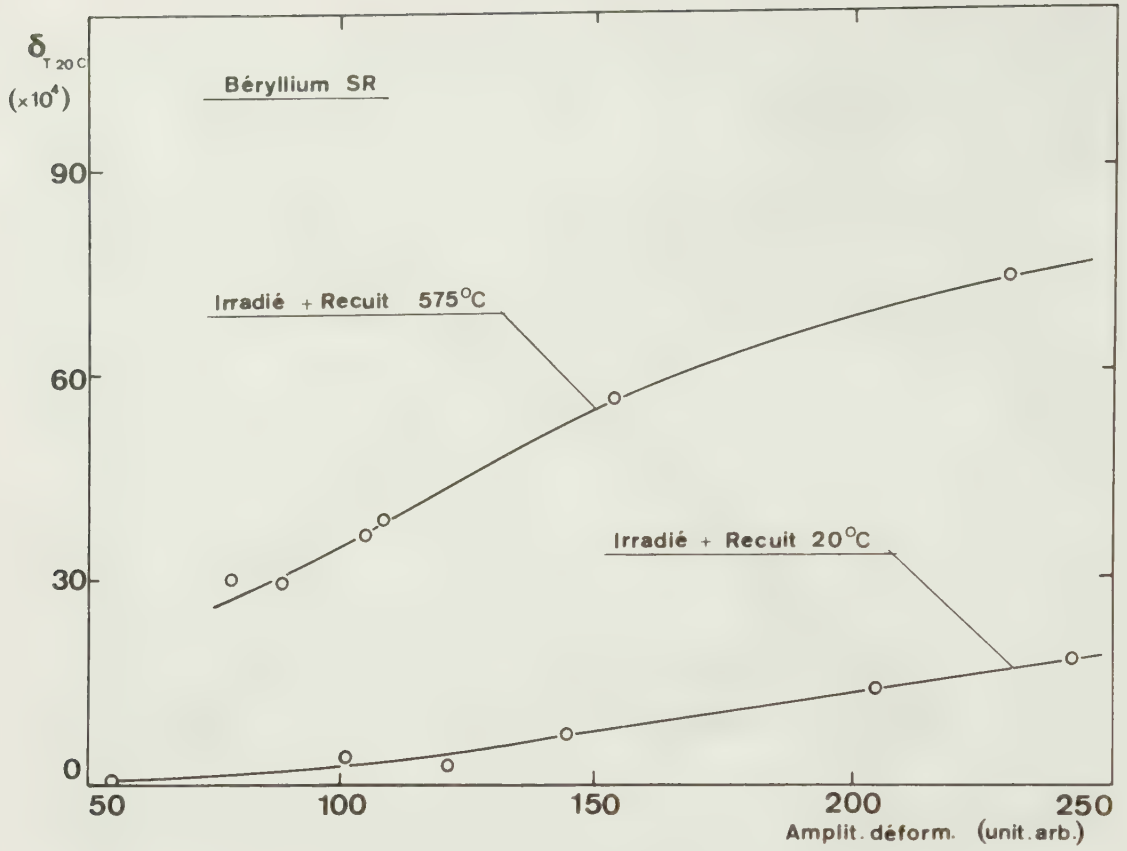


FIG. 22 - Variation du décrément des oscillations en fonction de leur amplitude.

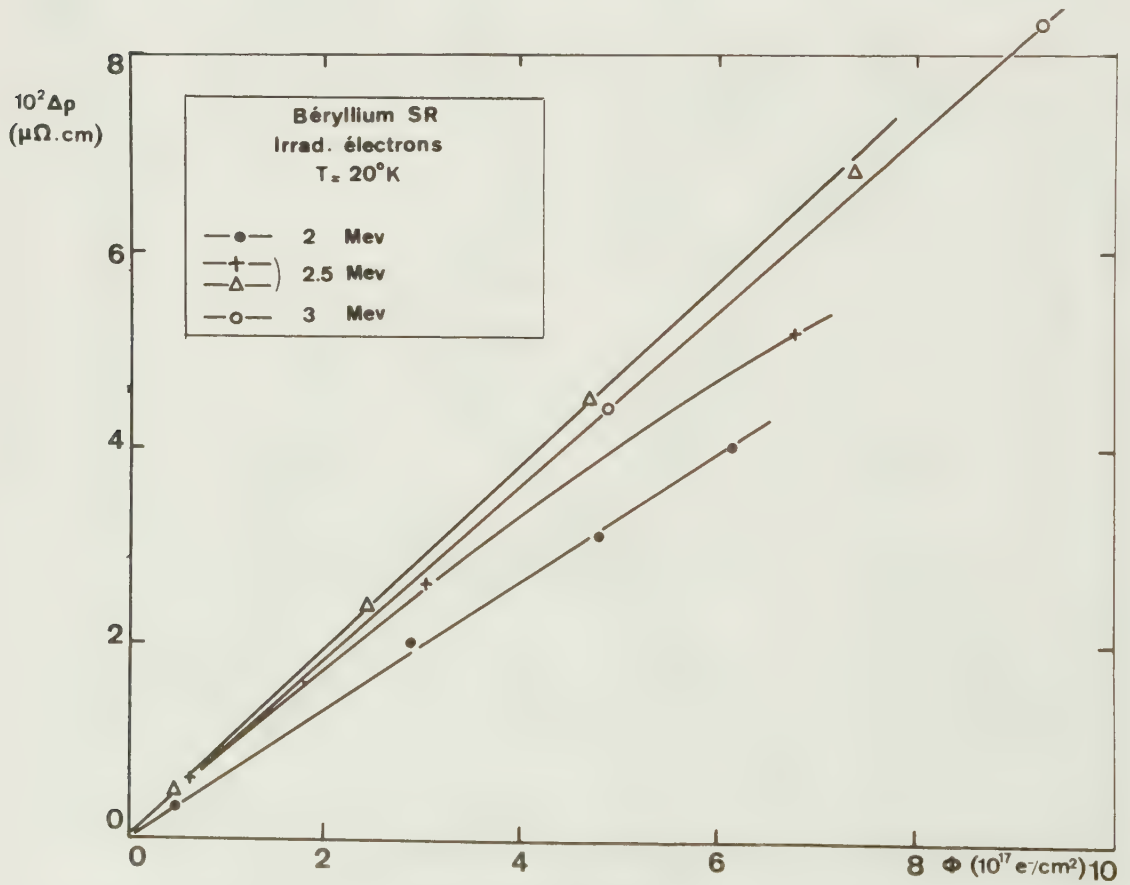


FIG. 23 - Accroissement de résistivité électrique en fonction du flux intégré d'électrons.

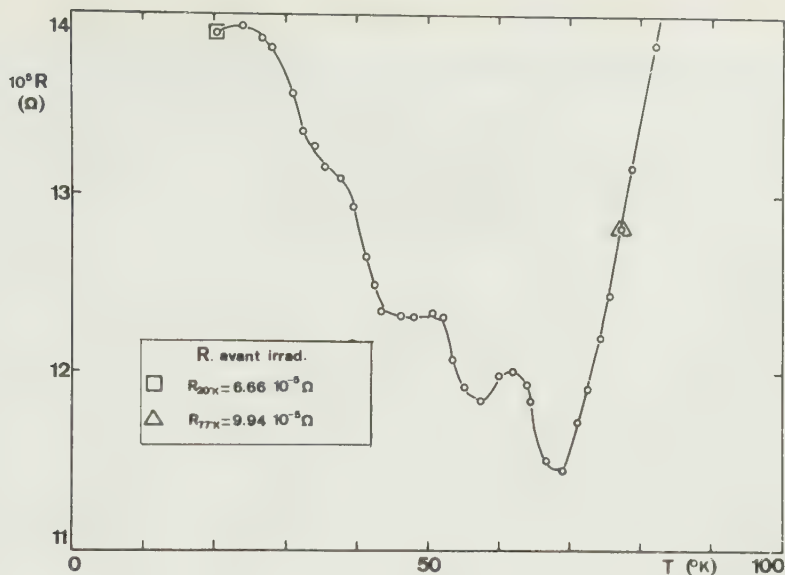


FIG. 24 - Variation de la résistance électrique d'un échantillon de béryllium irradié par des électrons à $20^{\circ}K$, au cours d'un réchauffage continu entre 20 et $77^{\circ}K$

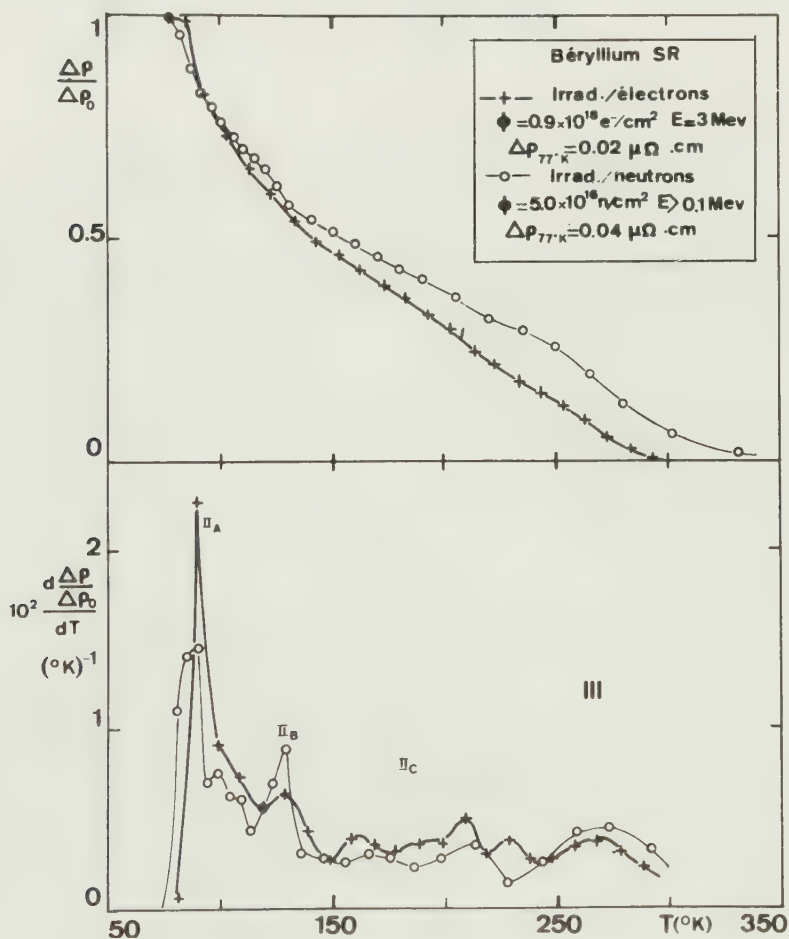


FIG. 25 - Restauration comparée au-dessus de $77^{\circ}K$ de la résistivité électrique pour deux échantillons irradiés :

- l'un par des neutrons à $4^{\circ}K$
 - l'autre par des électrons à $20^{\circ}K$
-) $\Delta \rho_0 = \Delta \rho_{77^{\circ}K}$

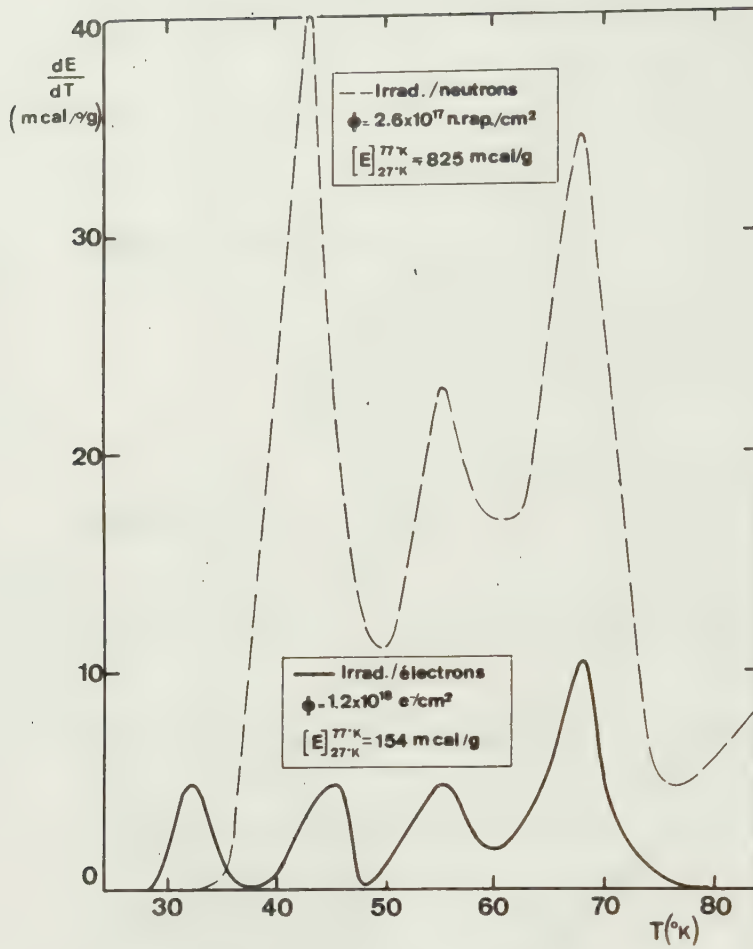


FIG. 26 - Spectres d'énergie libérée entre 20 et 77 °K au cours du recuit d'échantillons de béryllium irradiés :
 - l'un par des neutrons à 27 °K - l'autre par des électrons à 20 °K

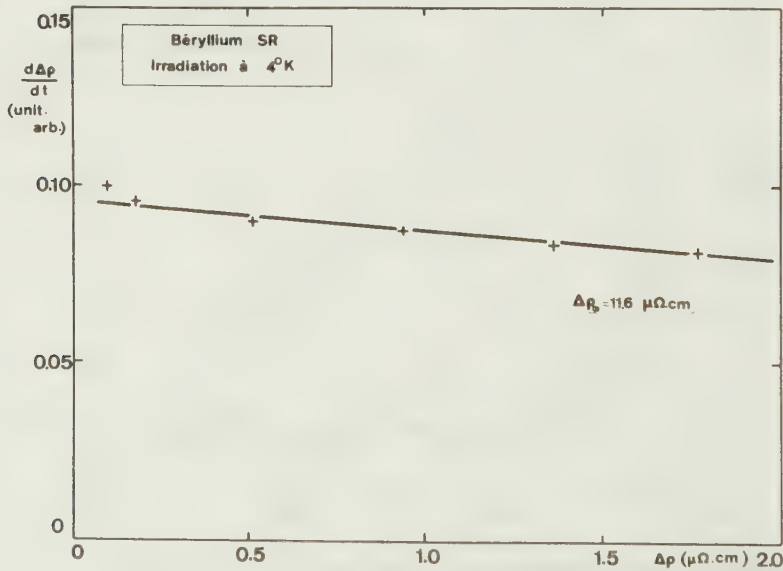


FIG. 27 - Vitesse d'accroissement de la résistivité électrique $\frac{d\Delta\rho}{dt}$ en fonction de l'augmentation de résistivité $\Delta\rho$. Cas d'une irradiation à 4 °K.

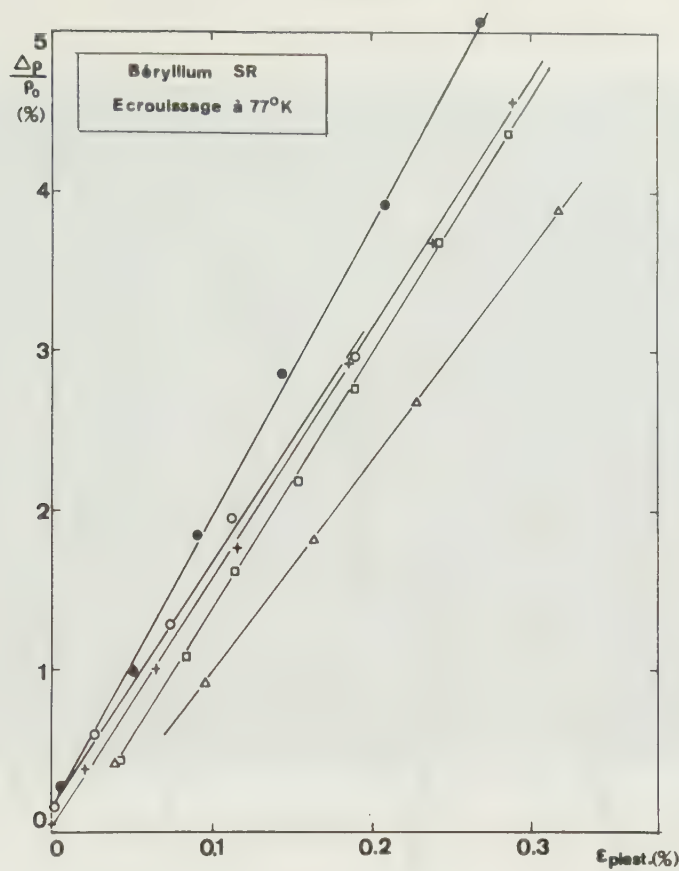


FIG. 28 - Augmentation de la résistivité électrique d'échantillons de béryllium écoués par traction à 77 °K ($\rho_0 = \rho_{77\text{ °K}}$)

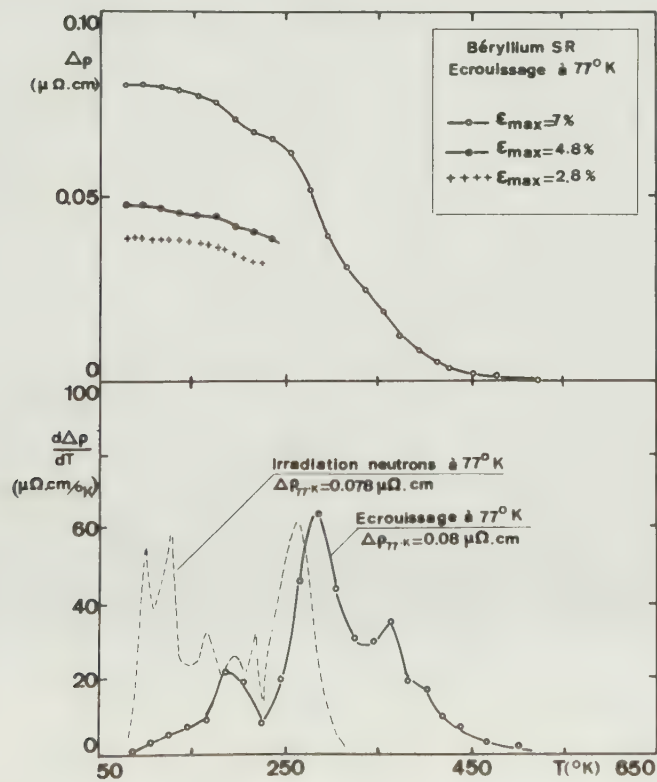


FIG. 29 - Restauration de la résistivité électrique d'échantillons écoués par compression à 77 °K. Recuits isochrones (20'/20 °K)

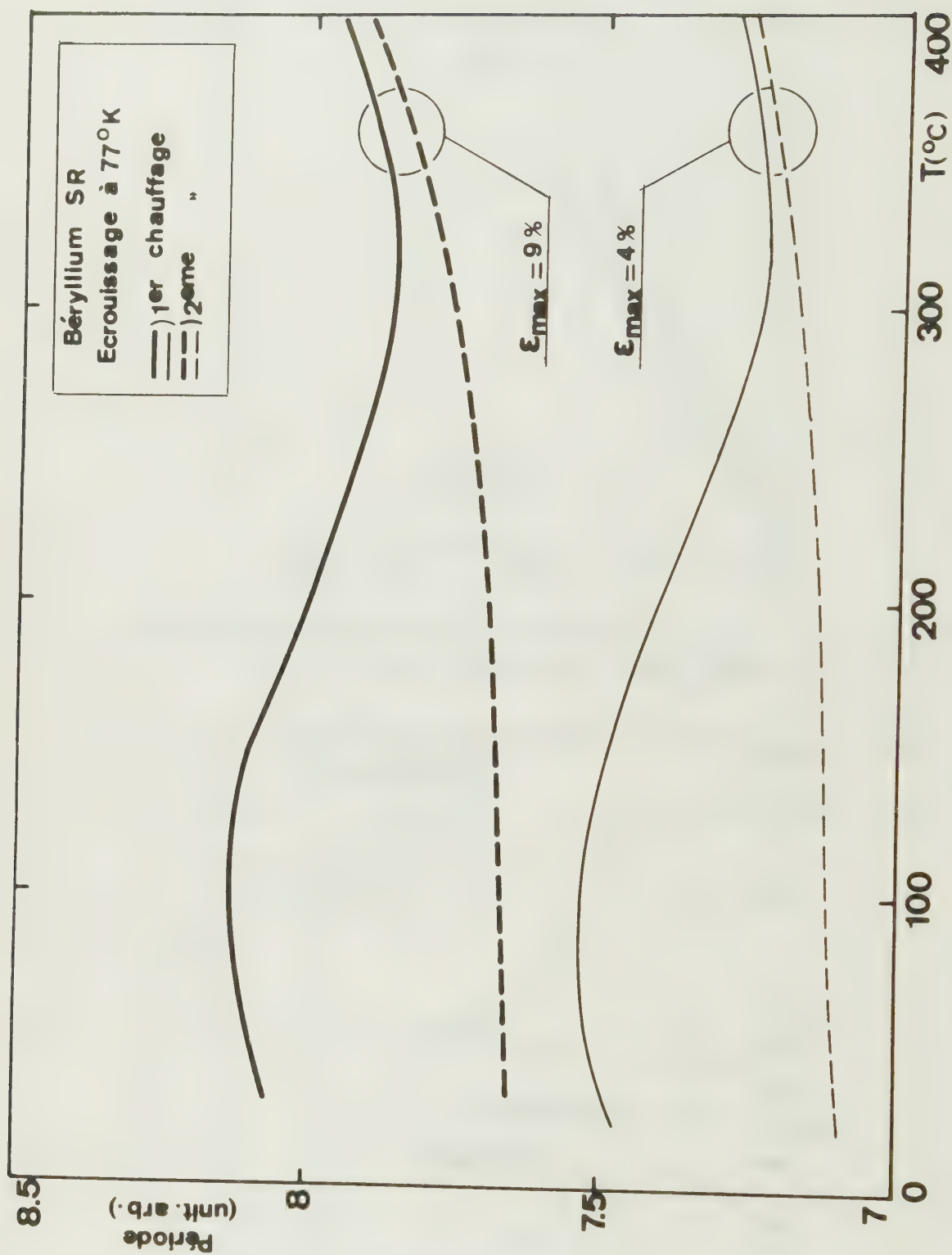
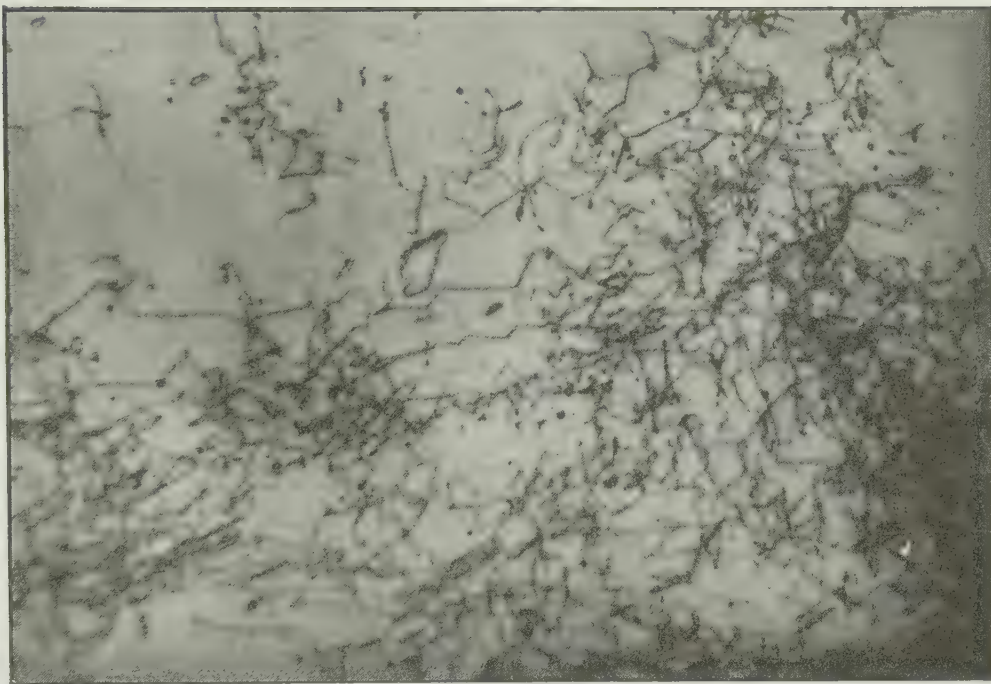
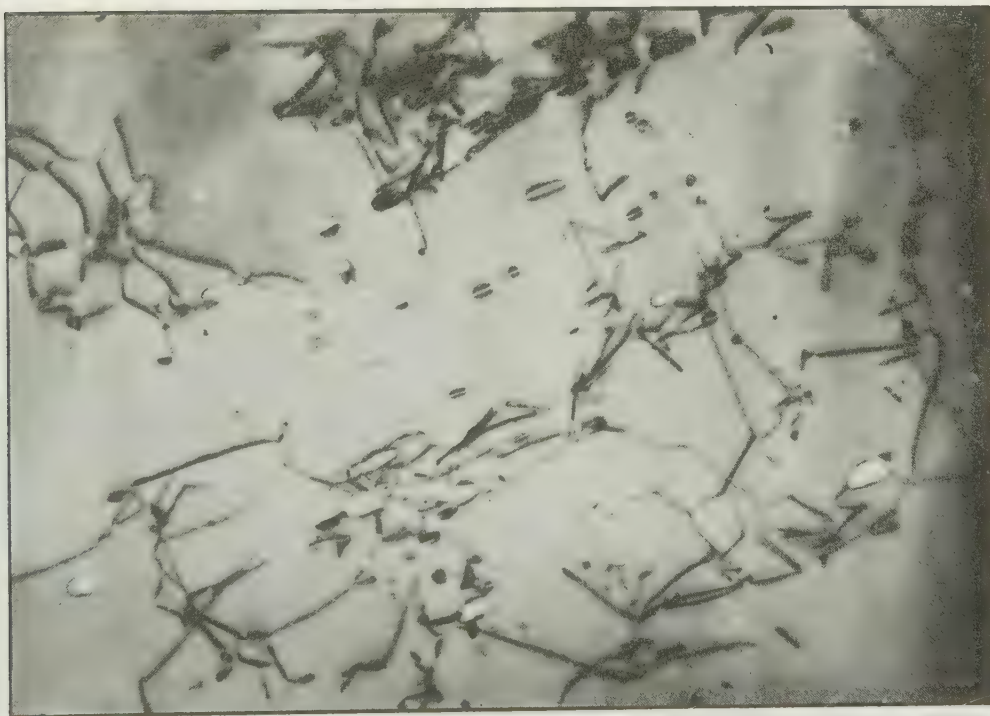


FIG. 30 - Variation de la période des oscillations du pendule en fonction de la température, pour deux échantillons écouis par compression à 77 °K.

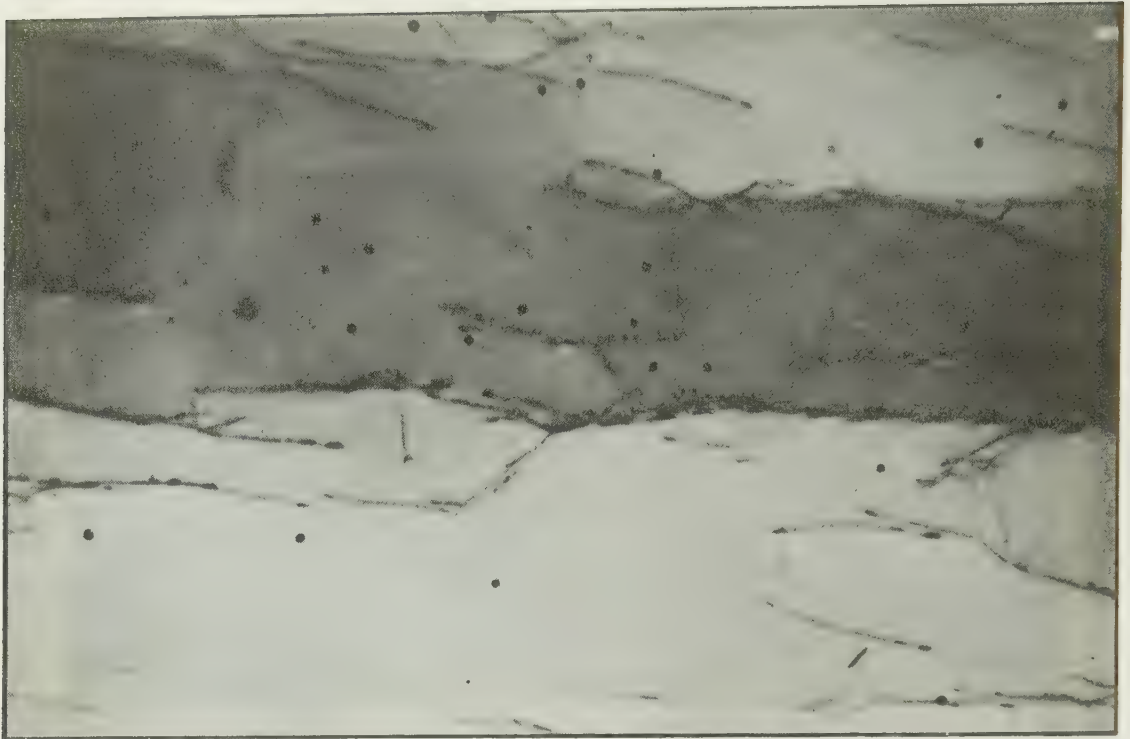


a. Be comprimé à 77 °K - Recuit à T. amb. $\times 20000$

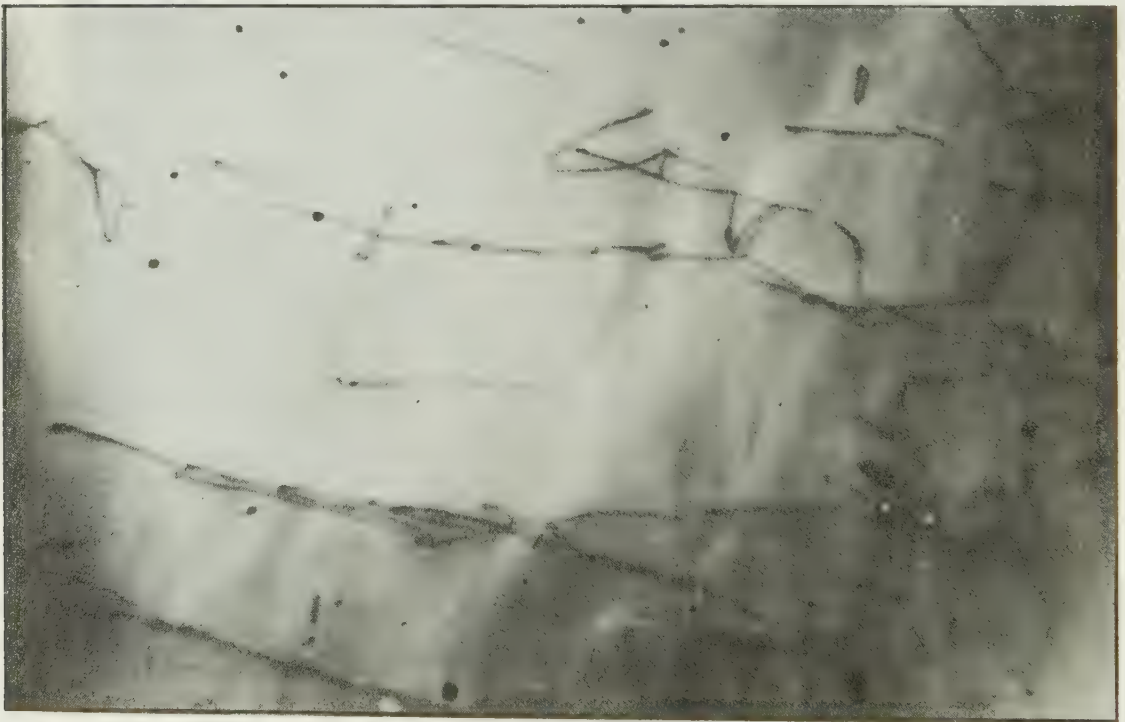


b. Be comprimé à 77 °K - Recuit 2 h. à 55 °C $\times 30000$

FIG. 31.



a. Be comprimé à 77 °K - Recuit 2 h, à 150 °C. x 20000



b. Be comprimé à 77 °K - Recuit 2 h, à 250 °C. x 20000

FIG. 32.

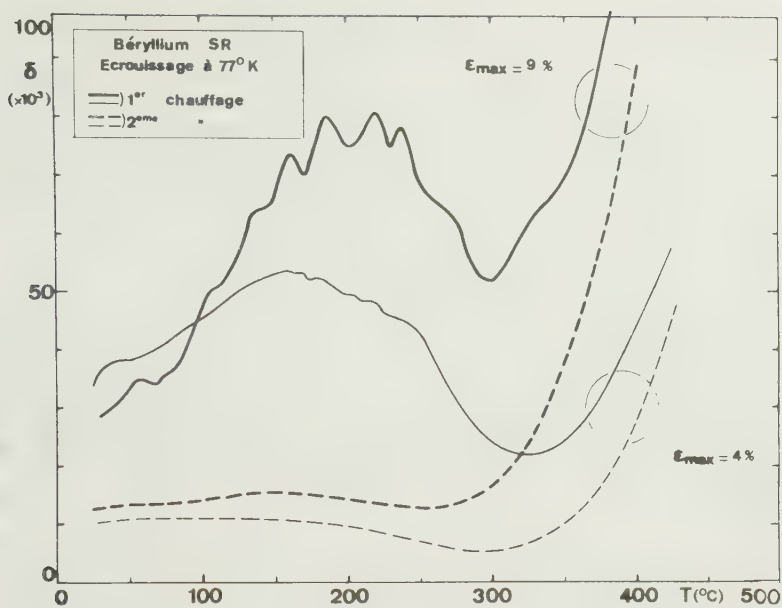


FIG. 33 - Variation du décrément des oscillations du pendule en fonction de la température pour deux échantillons écrois par compression à 77°K .

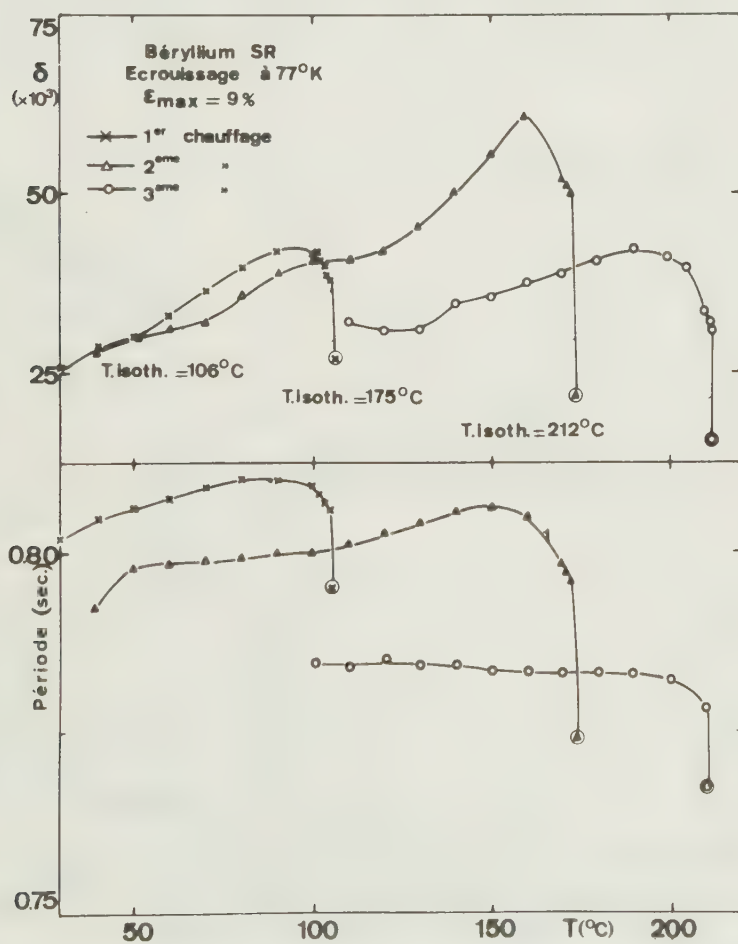


FIG. 34 - Variation du décrément et de la période des oscillations, au cours de recuits isothermes effectués à différentes températures et au cours des chauffages correspondants.

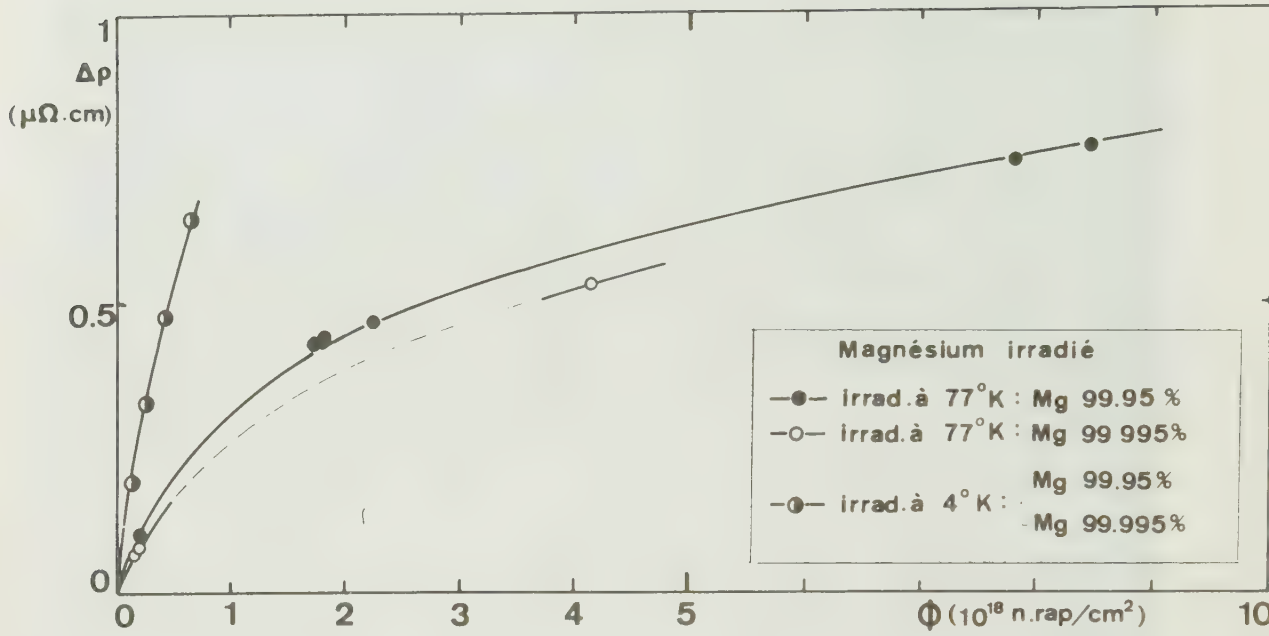


FIG. 35 - Augmentation de la résistivité électrique en fonction du flux intégré de neutrons.

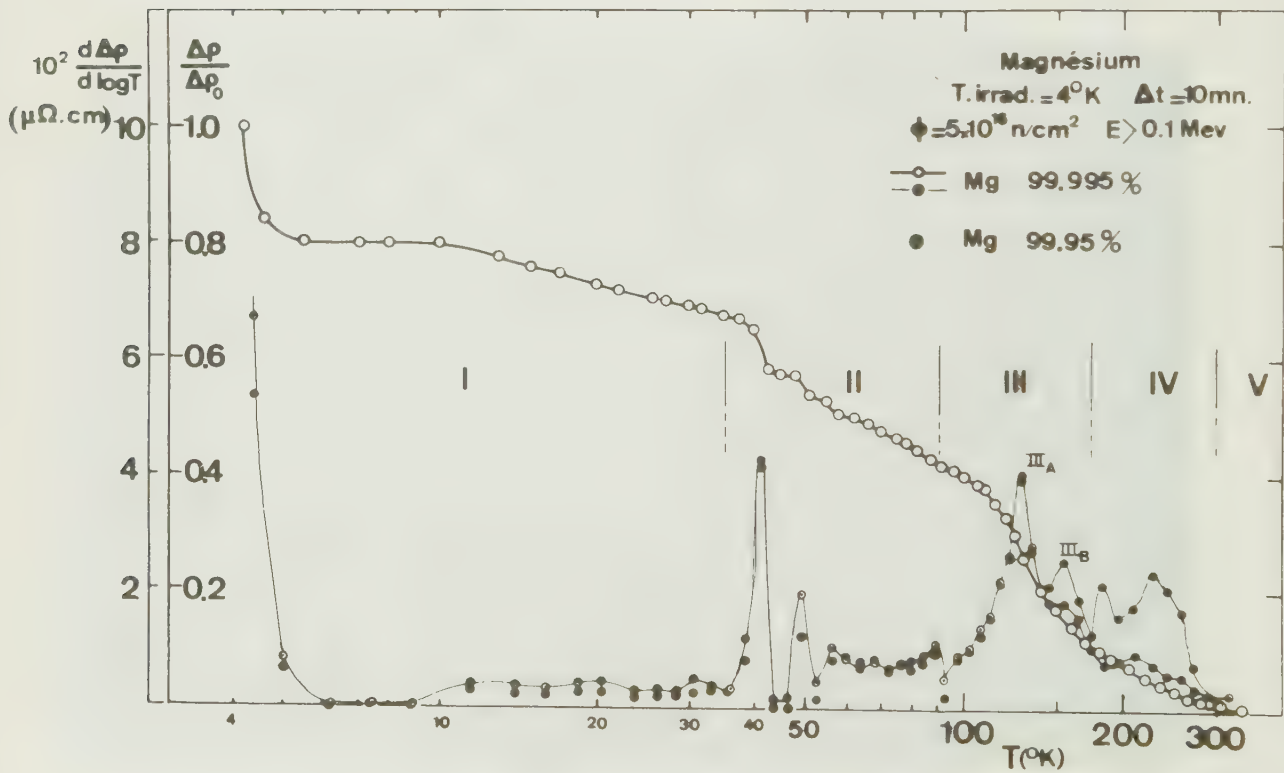


FIG. 36 - Restauration de la résistivité électrique après irradiation par des neutrons à 4 °K. Courbe normée de recuits isochrones (Mg 99,995 %).
Courbes dérivées de recuits isochrones (Mg 99,995 % et Mg 99,95 %).

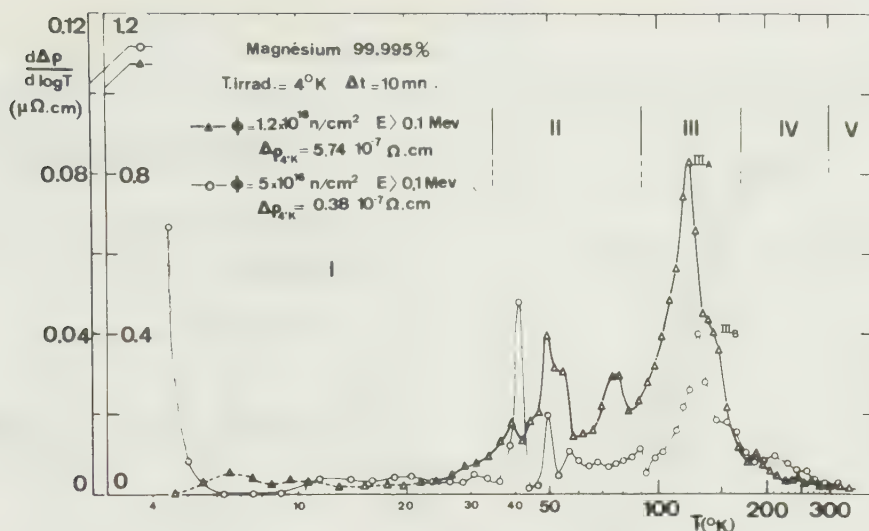


FIG. 37 - Restauration de la résistivité électrique après irradiation par des neutrons à 4 °K. Courbes dérivées de recuits isochrones pour deux flux intégrés de neutrons (Mg 99,995 %).

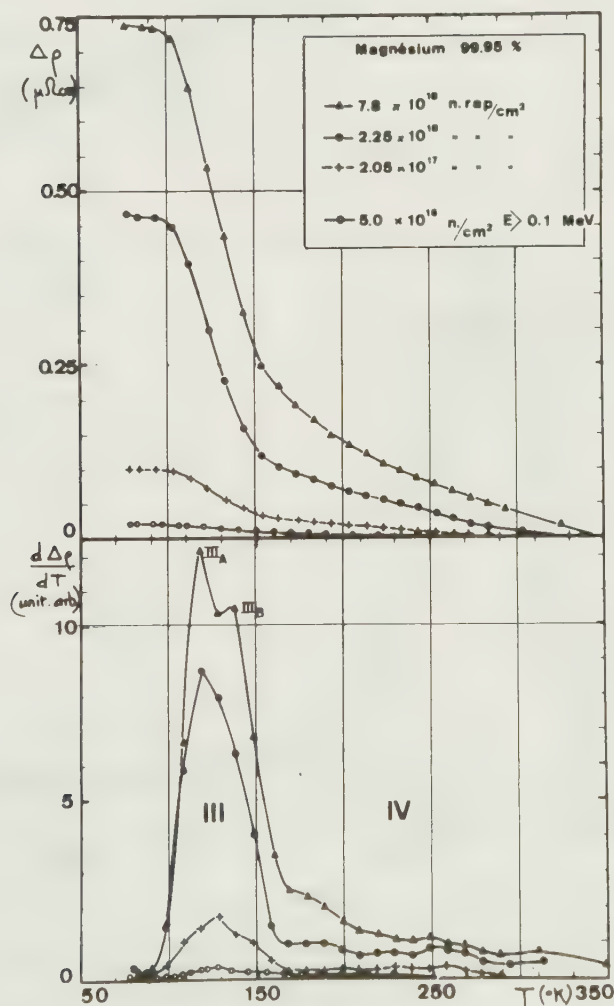


FIG. 38 - Restauration de la résistivité électrique du magnésium 99,95 % après irradiation par des neutrons à 77 °K. Courbes de recuits isochrones obtenues pour différents flux intégrés et courbes dérivées correspondantes.

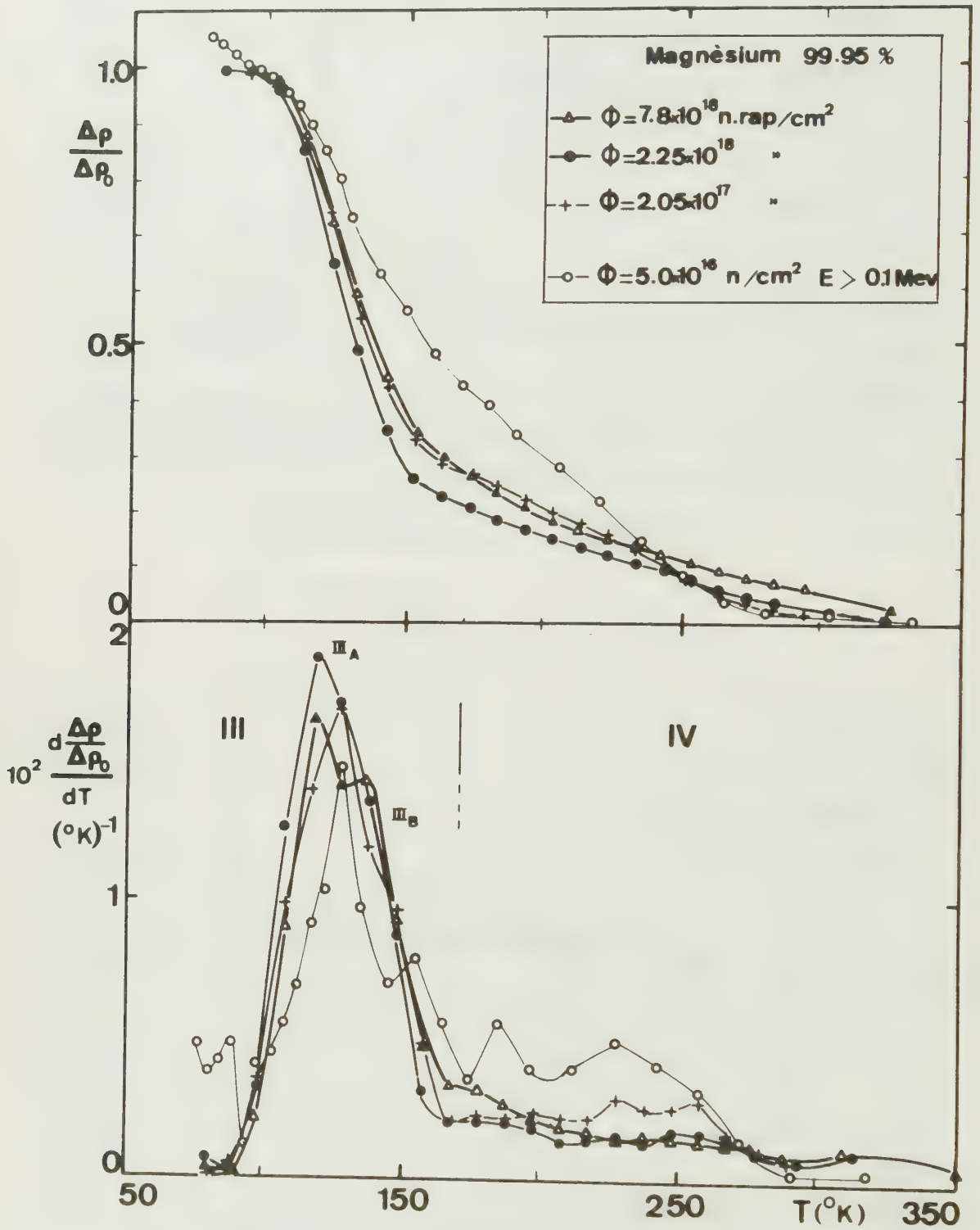


FIG. 39 - Représentation normée des courbes de la figure 38 ($\Delta\rho_0 = \Delta\rho_{90^{\circ}\text{K}}$)

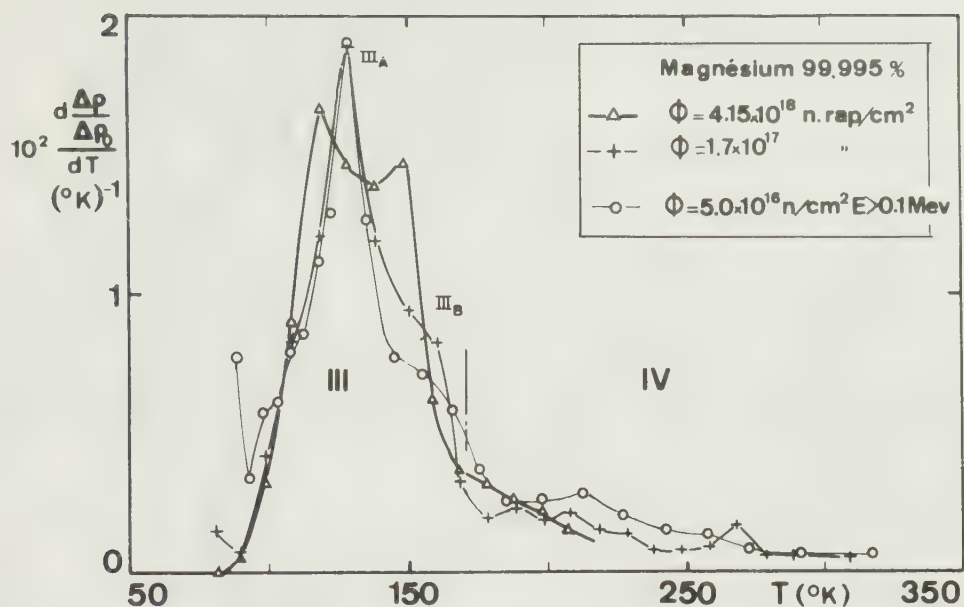


FIG. 40 - Restauration de la résistivité électrique du magnésium 99,995 % après irradiation par des neutrons à 77 °K. Courbes dérivées normées obtenues pour différents flux intégrés de neutrons ($\Delta \rho_0 = \Delta \rho_{90 \text{ °K}}$).

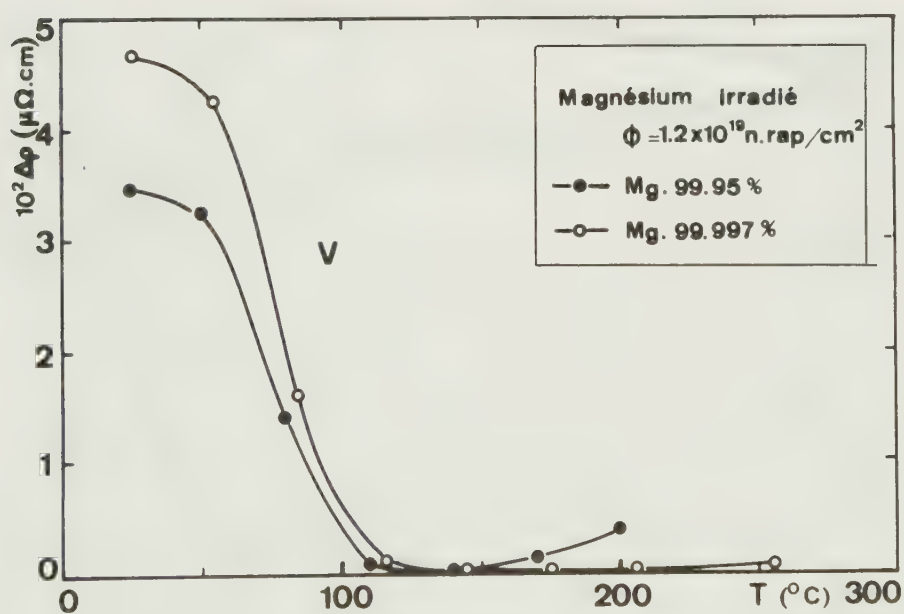


FIG. 41 - Stade V de la restauration de la résistivité électrique du magnésium irradié par des neutrons (Mg 99,95 % et Mg 99,997 %)
($T^{\circ} \text{irrad} = 77 \text{ °K}$ - Recuits isochrones)
(Les mesures de résistivité électrique ont été effectuées à 4 °K).

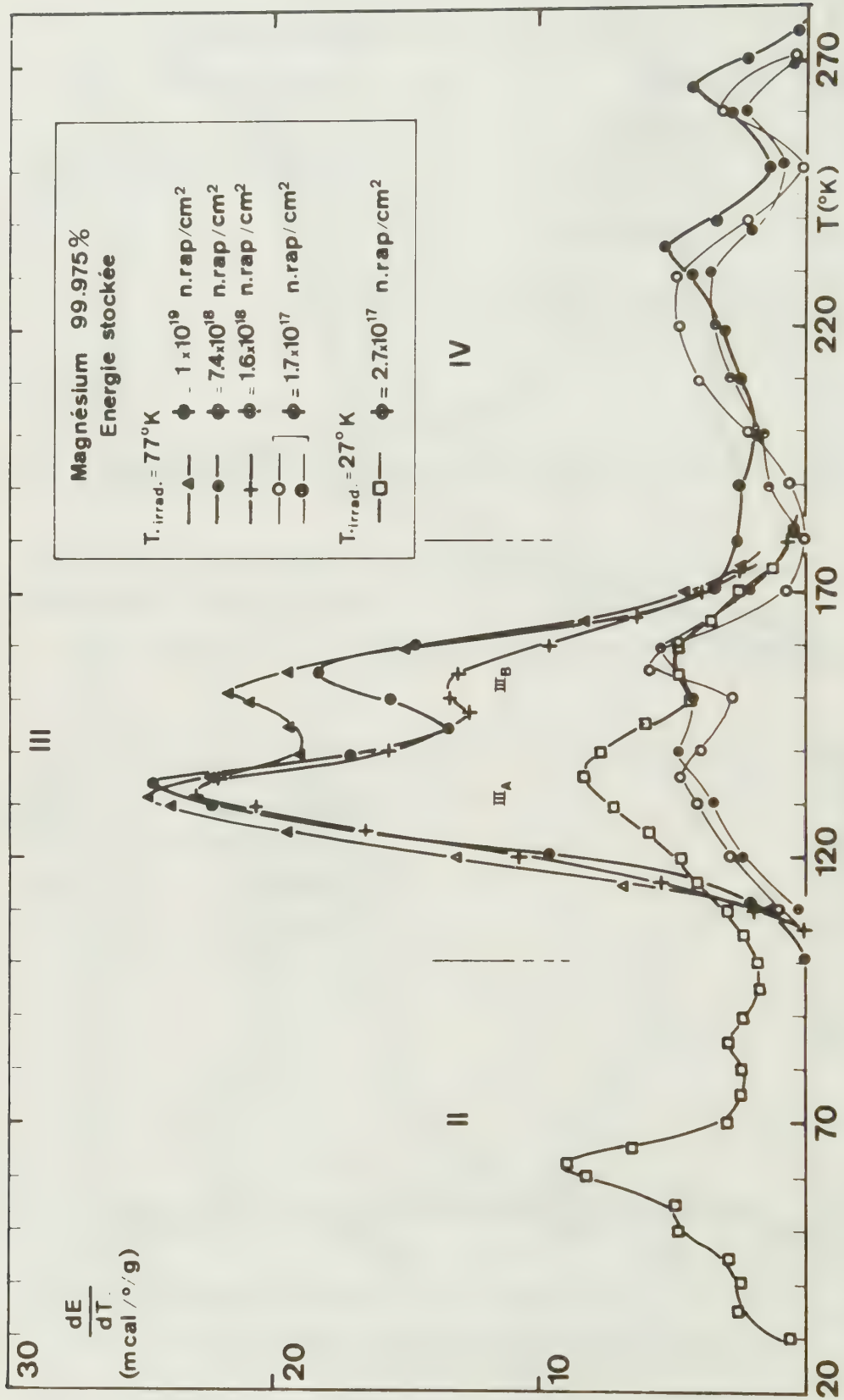


FIG. 42 - Spectres d'énergie libérée au cours du recuit d'échantillons de magnésium 99,975 % irradiés à 27 °K et à 77 °K (chauffage linéaire : 2,5°/minute).

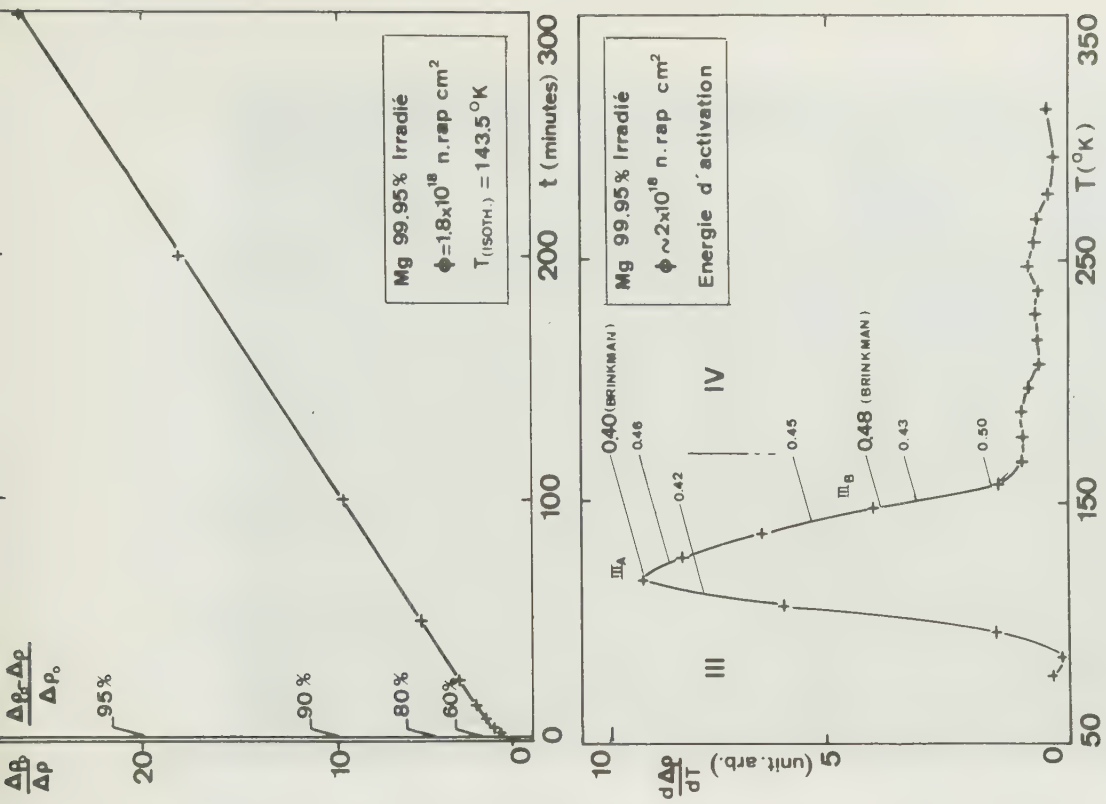


FIG. 44 - Vérification de l'ordre $\phi = 2$ dans le sous-stade III_B.
Energies d'activation déterminées dans le stade III.

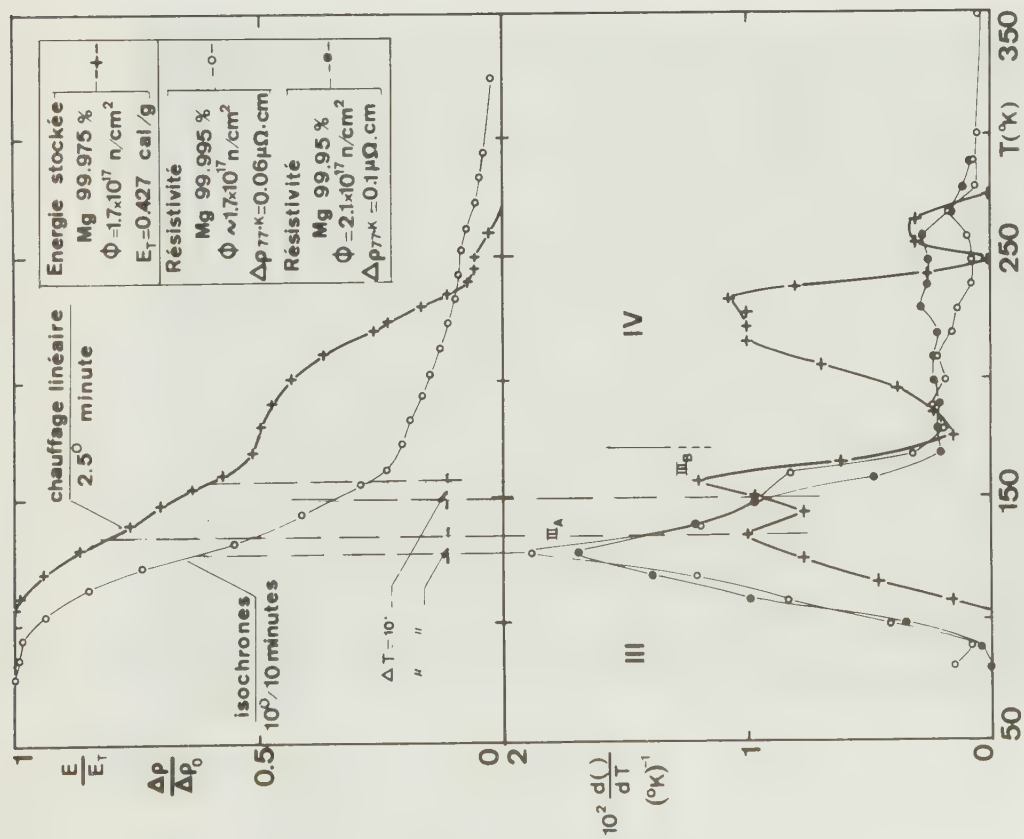


FIG. 43 - Comparaison, dans le cas d'une faible dose d'irradiation, de la restauration de la résistance électrique et de la libération de l'énergie emmagasinée

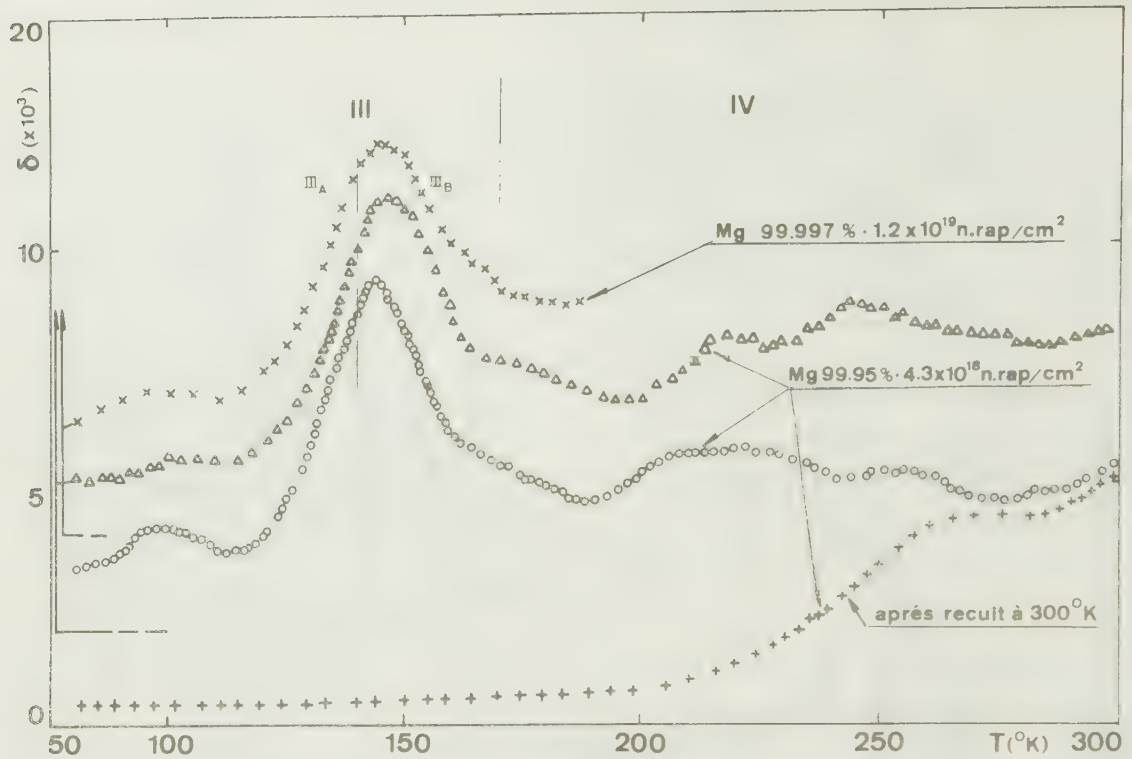


FIG. 45 - Variation du frottement intérieur en fonction de la température au cours du réchauffage d'échantillons de magnésium irradiés à 77 °K (d'après [34]).

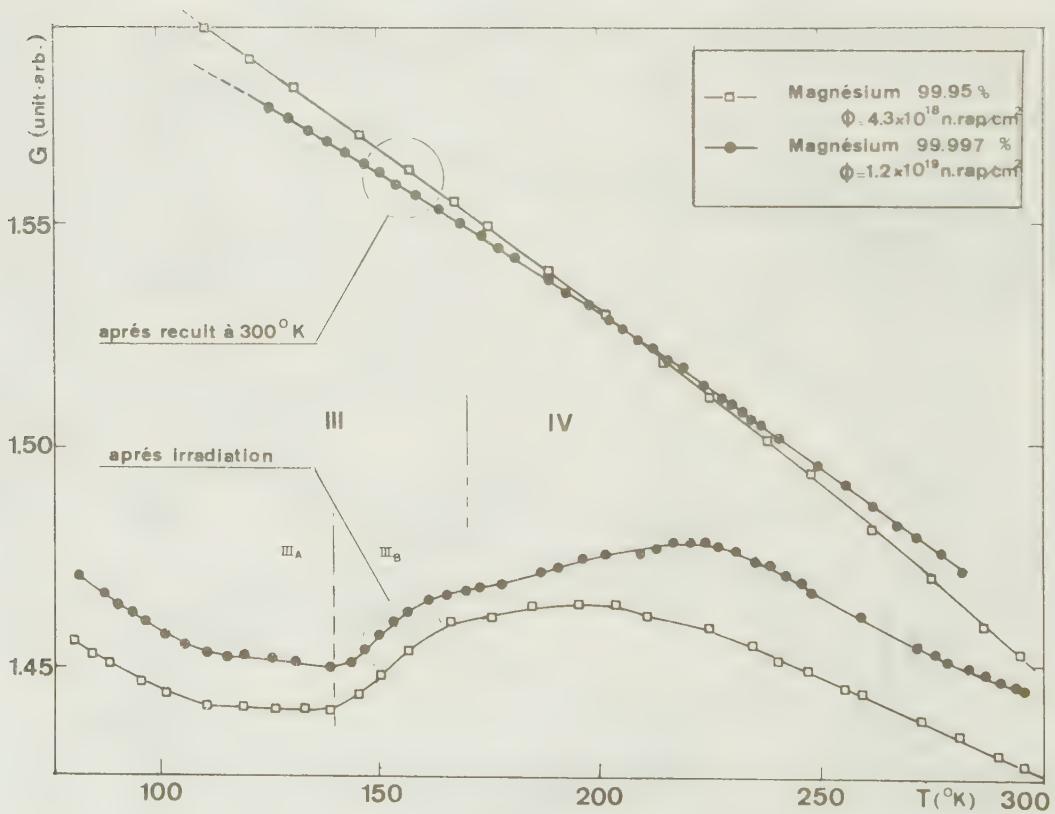
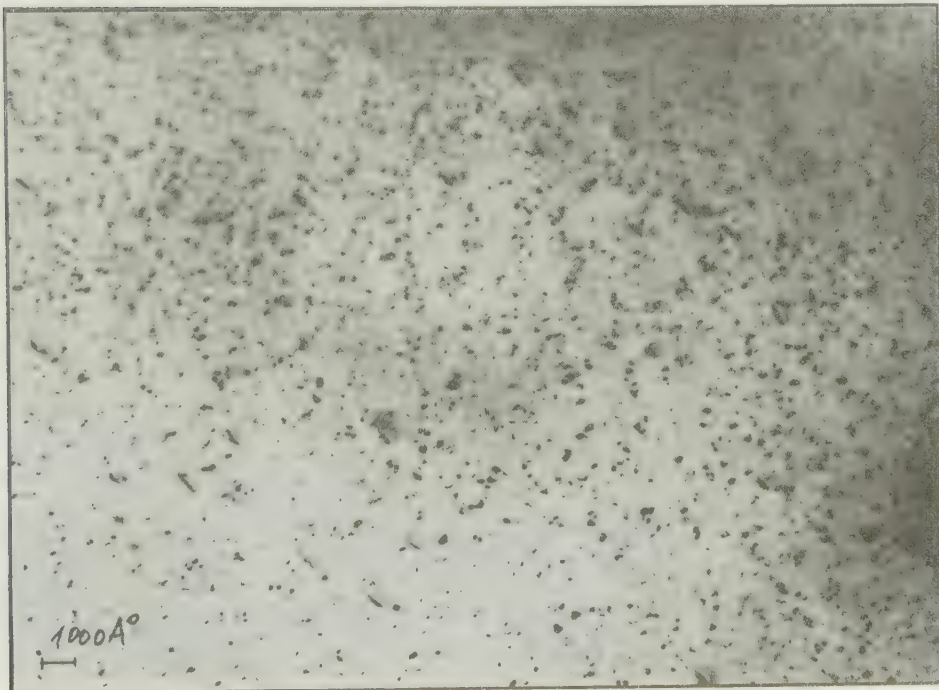


FIG. 46 - Variation du module de cisaillement en fonction de la température au cours du réchauffage d'échantillons de magnésium irradiés à 77 °K (d'après [34]).

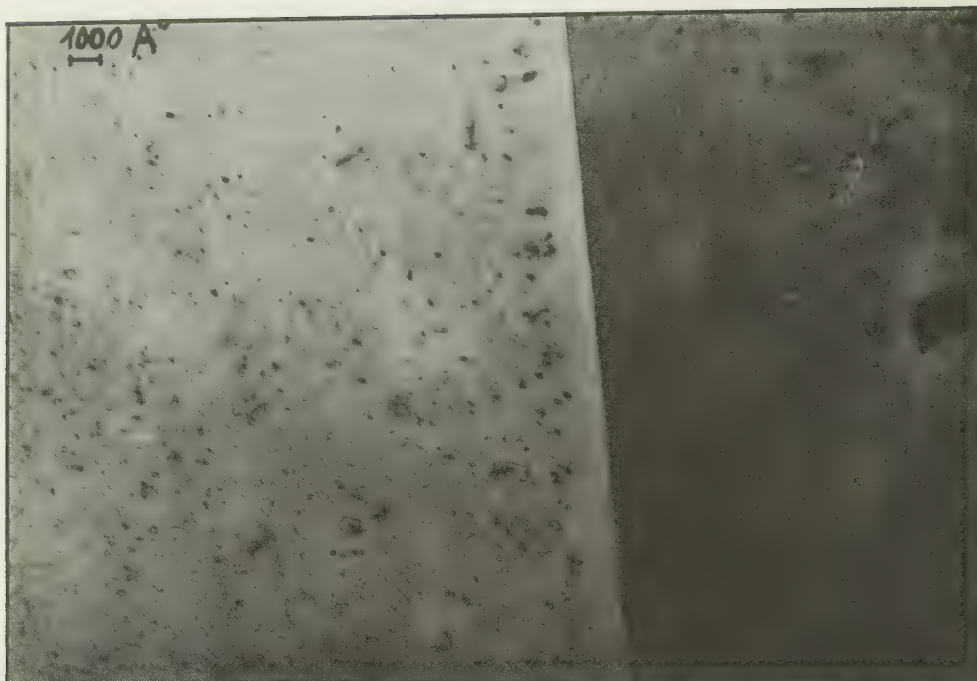


a. Magnésium 99,995 % x 40000
Irradié à 77 °K + recuit à T_{amb} ($\Phi = 1 \times 10^{19}$ n. rap/cm²)



b. Magnésium 99,9999 % x 40000
Irradié à 77 °K + recuit à T_{amb} ($\Phi = 1 \times 10^{19}$ n. rap/cm²)

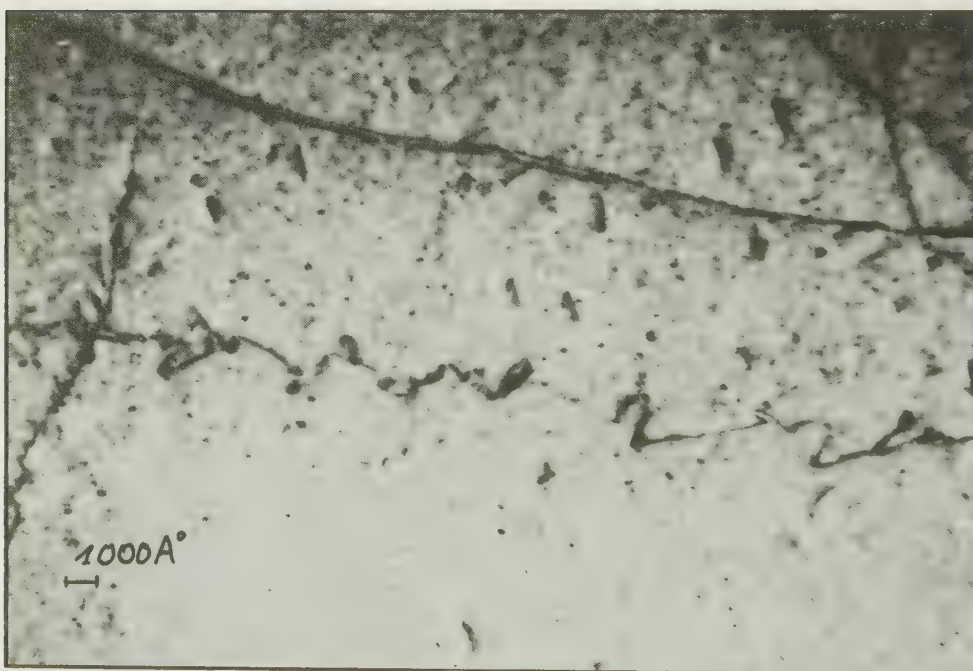
FIG. 47



a. Magnésium 99,995 %

x 40000

Irradié à 77 °K ($\Phi = 1 \times 10^{19}$ n.rap/cm²) + recuit à T_{amb}

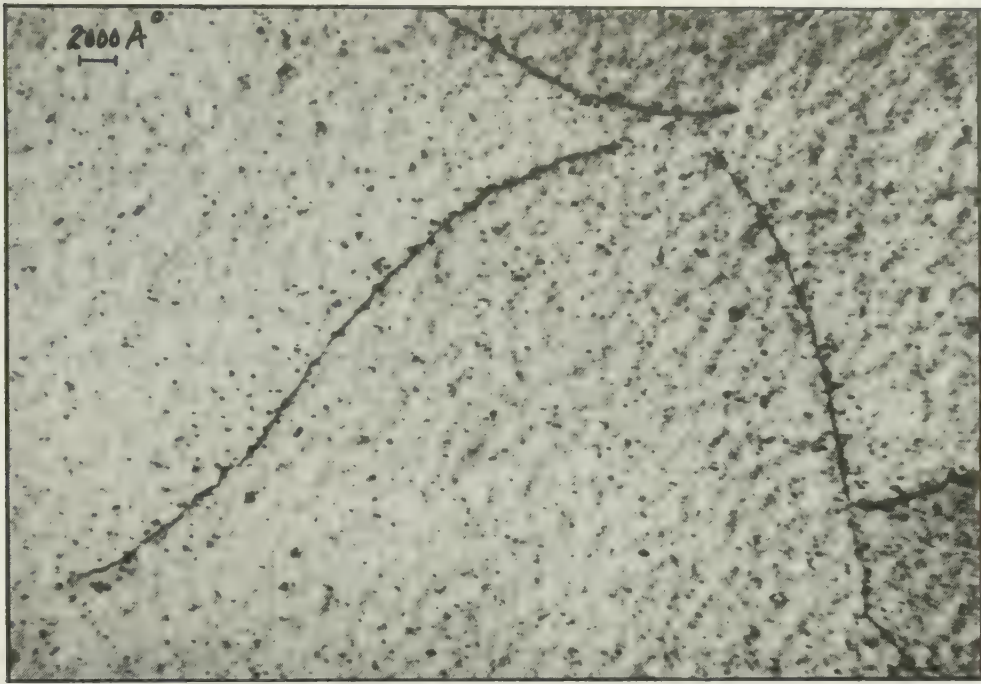


b. Magnésium 99,995 %

x 40000

Irradié à 77 °K ($\Phi = 1.10^{19}$ n.rap/cm²) + recuit à T_{amb}

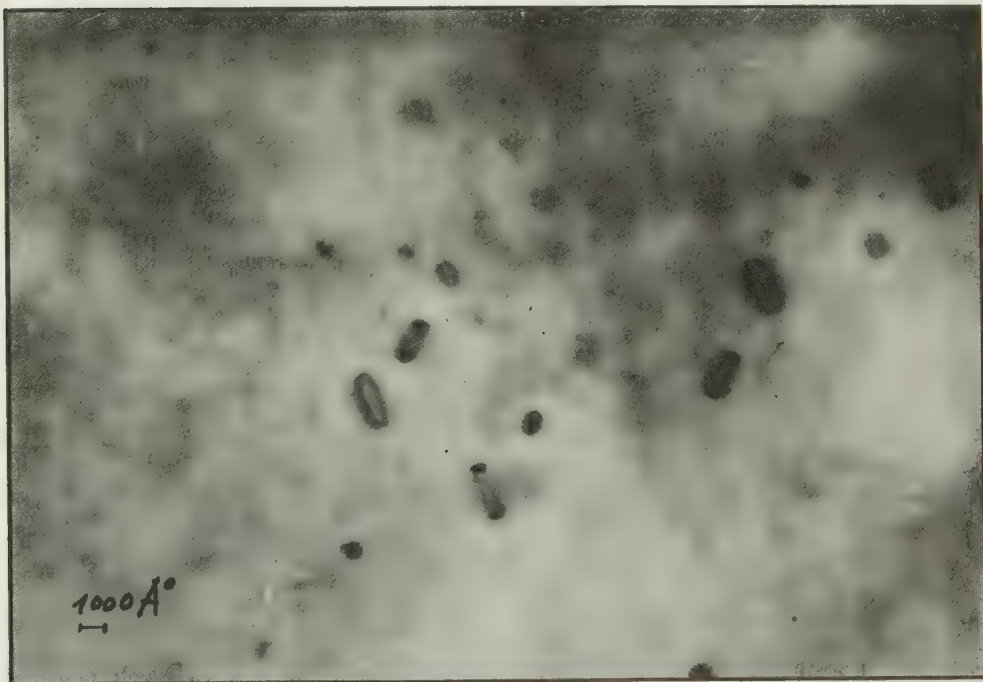
FIG. 48



a. Magnésium 99,995 %

x24000

Irradié à 77 °K ($\Phi = 1 \times 10^{19}$ n, rap/cm²) + recuit à 60 °C (15 mn)



b. Magnésium 99,995 %

x36000

Irradié à 77 °K ($\Phi = 1 \times 10^{19}$ n, rap/cm²) + recuit à 100 °C (15 mn)

FIG. 49

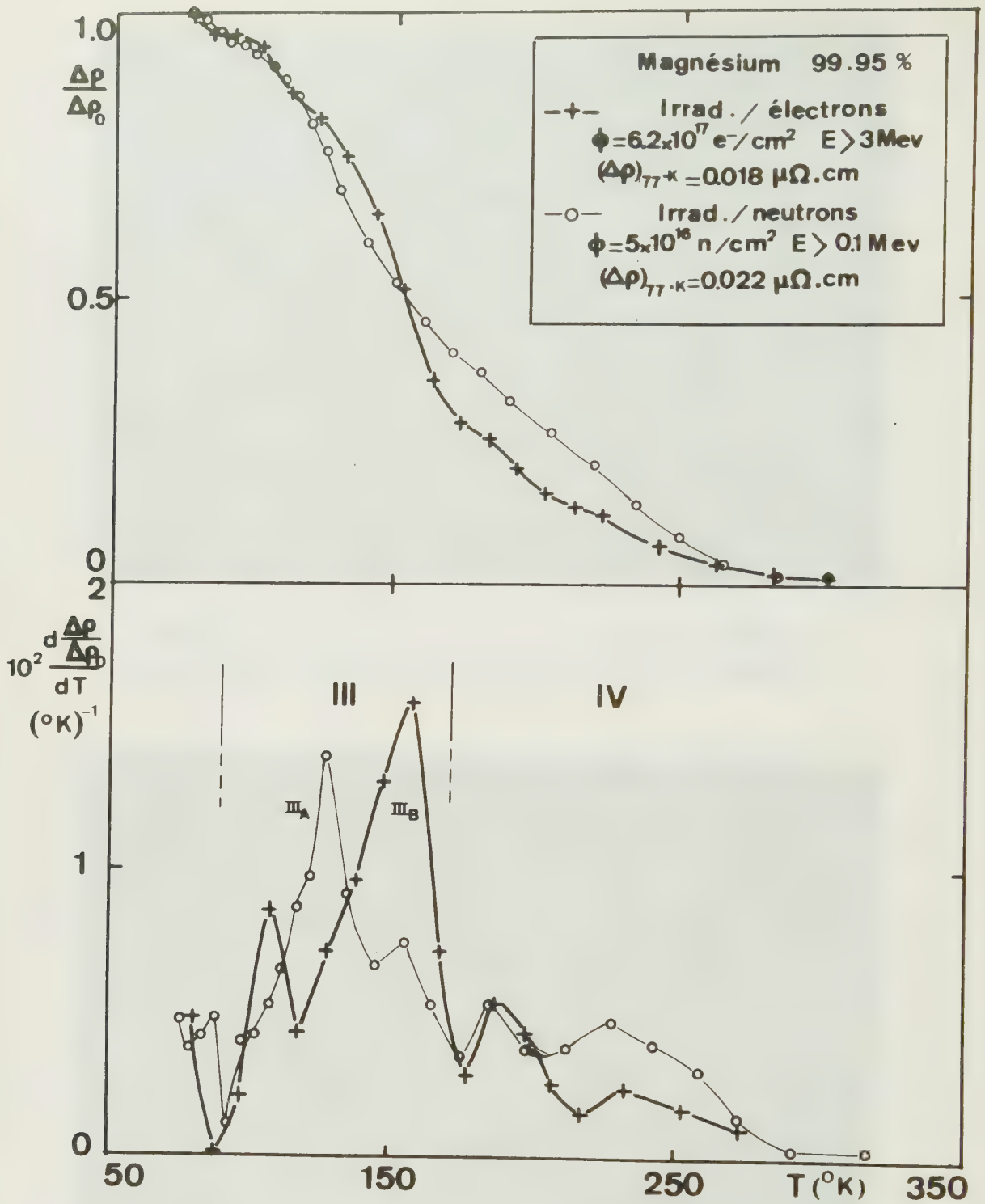


FIG. 50 - Restauration comparée, au-dessus de 77 °K, de la résistivité électrique pour deux échantillons irradiés

- l'un par des neutrons à 4 °K
 - l'autre par des électrons à 20 °K
-) $\Delta\rho_0 = \Delta\rho_{77\text{K}}$

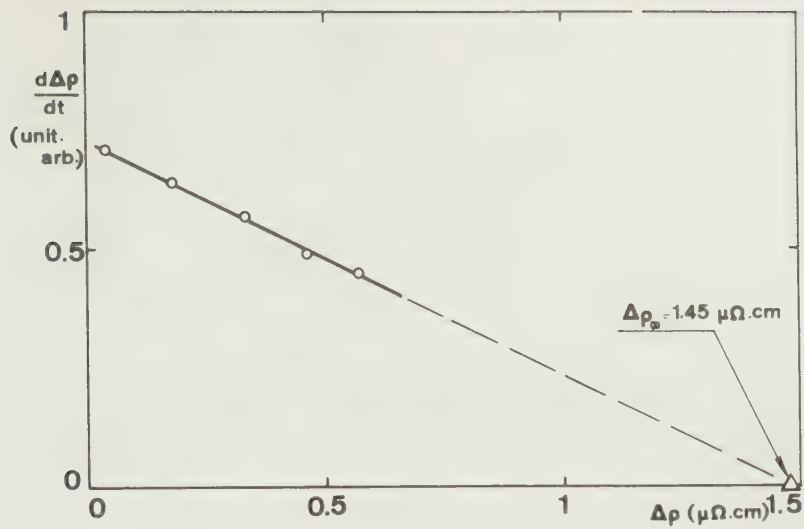


FIG. 51 - Vitesse d'accroissement de la résistivité électrique $\frac{d\Delta\rho}{dt}$ en fonction de l'augmentation de résistivité $\Delta\rho$. Cas d'une irradiation à 4 °K.

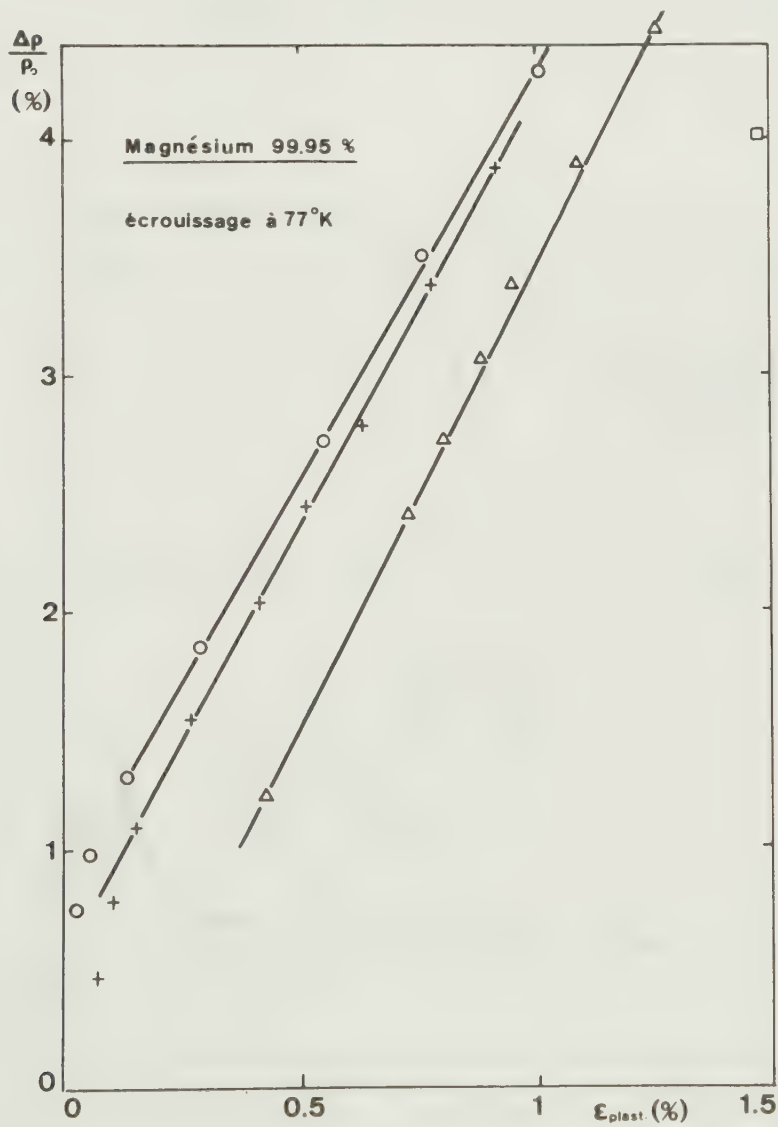


FIG. 52 - Augmentation de la résistivité électrique d'échantillons de magnésium écrouis par traction à 77 °K ($\rho_0 = \rho_{77\text{ °K}}$)

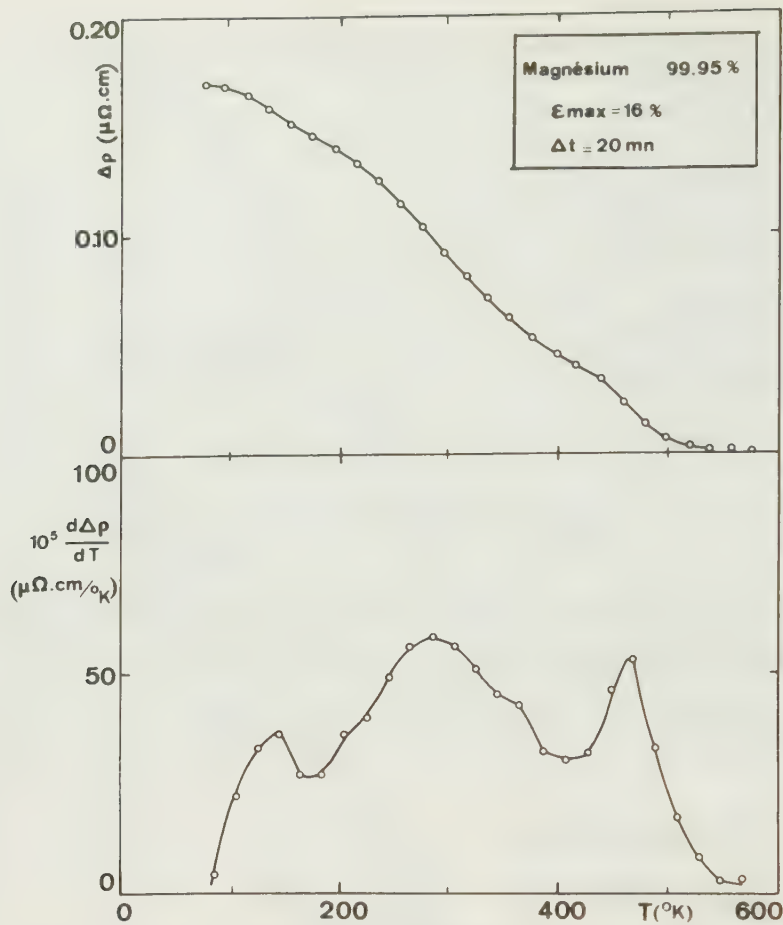


FIG. 53 - Restauration de la résistivité électrique d'un échantillon écroui par compression à 77 °K. Recuits isochrones (20'/20 °K).

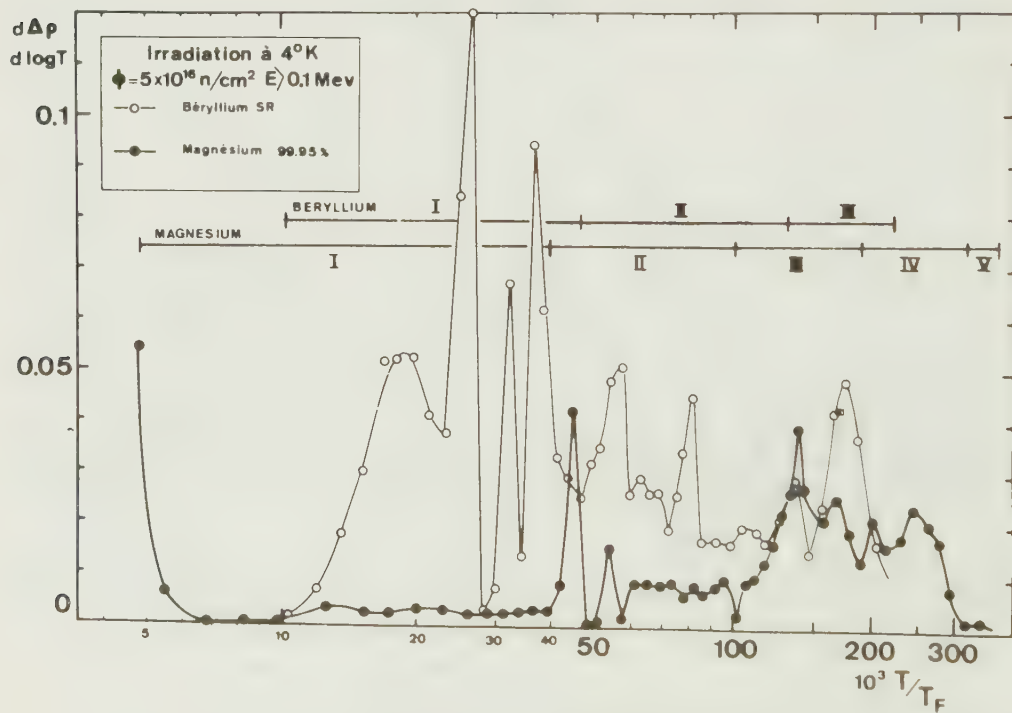


FIG. 54 - Comparaison des spectres de restauration obtenus après irradiation à 4 °K du béryllium et du magnésium, (Courbes dérivées des figures 16 et 36 pour lesquelles les températures sont rapportées aux températures de fusion respectives).

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

Vu et approuvé

Orsay, le 11 mai 1970

Le Doyen de la Faculté des Sciences

G. POITOU

